

Resumen

El presente trabajo final de grado tiene como objetivo general la optimización del proceso de determinación de aerosoles radiactivos mediante muestreadores de bajo caudal en el aire de la ciudad de Barcelona, que se lleva a cabo en el Laboratorio de Análisis de Radiactividad del Instituto de Técnicas Energéticas.

Por una parte, se procede a estudiar los procesos de determinación de la concentración de aerosoles para muestras ambientales semanales y trimestrales. Para de esta manera, proponer acciones de mejora en los puntos susceptibles a ser modificados.

La propuesta de acciones de mejora para los resultados de la actividad beta total de filtros procedentes de muestras semanales han consistido en un cambio del factor spillover y de la eficiencia de detección, la valoración del tiempo de espera entre captación de los aerosoles y su medida y, por último, la evaluación del impacto de la presencia de diversos isótopos presentes en las muestras. En el caso de los resultados de espectrometría gamma de muestras trimestrales, las propuestas de mejora han consistido en la eficiencia de detección empleada y en la valoración del impacto de la geometría de colocación de la muestra.

Por otra parte, también se lleva a cabo una validación de la metodología propuesta mediante la comparación de la actividad beta y la actividad gamma obtenida para dos conjuntos de muestras homogéneas o ideales, y otro conjunto de muestras heterogéneas o reales.

Además del estudio, tratamiento y comparación de los resultados, el documento también incluye una introducción teórica sobre los aerosoles radiactivos, los métodos de medida empleados, el estudio económico del desarrollo del trabajo y un breve comentario sobre el impacto ambiental que supone la realización de este trabajo.

Finalmente, en el apartado de conclusiones se resaltarán las principales optimizaciones obtenidas durante la realización del trabajo.

Sumario

RESUMEN.....	1
SUMARIO	3
1 INTRODUCCIÓN.....	5
1.1 Origen y motivación.....	6
1.2 Finalidad y objetivos.....	6
1.3 Alcance del proyecto.....	7
1.4 Antecedentes	7
2 AEROSOLES	9
2.1 Introducción	9
2.2 Aerosoles radiactivos	10
2.2.1 Radionucleidos de la corteza terrestre.....	11
3 INSTRUMENTACIÓN Y METODOLOGÍA.....	18
3.1 Punto de muestreo	18
3.1.1 Características climatológicas	18
3.2 Descripción del captador de aerosoles	18
3.2.1 Equipo de captación de aerosoles de bajo caudal.....	18
3.3 Equipos empleados para la determinación de radiactividad	19
3.3.1 Laboratorio de Análisis de Radiactividad.....	19
3.3.2 Contadores proporcionales alfa y beta de bajo fondo	20
3.3.3 Detectores de espectrometría gamma de alta resolución	21
3.3.3.1 Calibración.....	24
4 RESULTADOS.....	26
4.1 Estudio del proceso.....	26
4.1.1 Muestras semanales	26
4.1.2 Muestras trimestrales.....	29
4.2 Detalle de las propuestas de las acciones de mejora	30
4.2.1 Muestras semanales	30
4.2.1.1 Spillover	30
4.2.1.2 Eficiencia de detección.....	31
4.2.1.3 Tiempo de espera para el recuento.....	33

4.2.1.4	<i>Investigación de otros isótopos presentes en las muestras</i>	35
4.2.2	Muestras trimestrales	36
4.2.2.1	<i>Estudio de la eficiencia de detección</i>	36
4.2.2.2	<i>Eficiencia gamma determinada</i>	38
4.2.2.3	<i>Influencia del orden de colocación de los filtros</i>	40
4.3	Validación de la metodología propuesta e influencia del orden de colocación	41
5	ESTUDIO ECONÓMICO.....	45
5.1	Costes directos.....	45
5.1.1	Tiempo de dedicación del personal.....	45
5.1.2	Material consumible	46
5.1.3	Amortizaciones de los equipos	46
5.1.4	Costes indirectos.....	47
5.2	Coste total	47
6	ESTUDIO DEL IMPACTO AMBIENTAL.....	48
6.1	Consideraciones.....	48
6.2	Residuos sólidos	48
6.3	Emisiones de gases.....	48
6.4	Emisión de sonido/ruido.....	48
6.5	Residuos especiales.....	48
7	PLANIFICACIÓN TEMPORAL DEL TRABAJO	50
	CONCLUSIONES	51
	AGRADECIMIENTOS	52
	BIBLIOGRAFÍA.....	53
	Referencias bibliográficas.....	53
	Bibliografía complementaria	53

1 Introducción

Desde la formación de la Tierra ha existido la radiactividad, por este motivo los seres vivos convivimos con ella y sus efectos asociados desde nuestros orígenes y, por lo tanto, no es un fenómeno nuevo. Así, existe una radiactividad natural presente tanto en el medio ambiente como en el interior del cuerpo humano.

Pero hasta el año 1896 en el cual se produjo el descubrimiento de la radiactividad y en las décadas siguientes en las cuales se fueron descubriendo sus diversas aplicaciones, no se conocieron los efectos nocivos que ejercía sobre los seres vivos.

En condiciones normales, la contribución principal a la dosis que los individuos recibimos proviene de la exposición a las fuentes de radiación natural, ya que son muy superiores a las fuentes antropogénicas. La radiación proveniente de fuentes artificiales es principalmente debida a los usos relacionados con la medicina, aunque también hay otras fuentes menores como son las centrales nucleares y las pruebas de armas nucleares del pasado. Tanto las fuentes naturales como las artificiales no presentan, ni en sus características físicas ni en los efectos sobre los seres vivos, ninguna diferencia entre sí.

En la Figura 1 se muestran las dosis efectivas medias de radiación recibidas por un individuo, según los datos elaborados por el Comité Científico de las Naciones Unidas en su estudio de los efectos de las radiaciones ionizantes. Tal y como se puede observar, el total de dosis efectiva de radiación debida a fuentes naturales es de 2,43 mSv por año a diferencia del total de dosis efectiva debida a fuentes artificiales que es tan solo de 0,6 mSv por año [1].

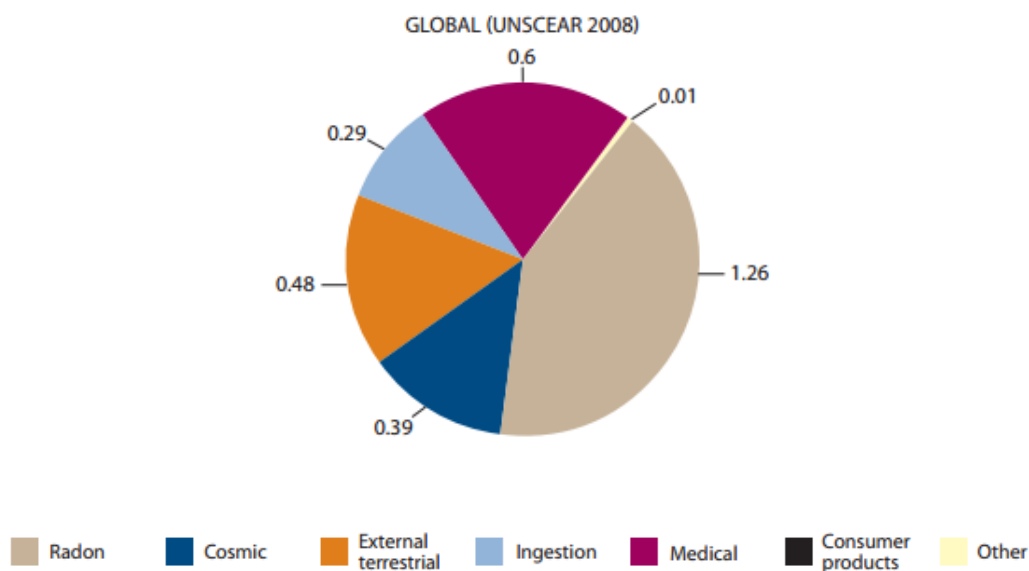


Figura 1. Dosis media debida a fuentes de radiación natural y artificial [1].

1.1 Origen y motivación

La elaboración de este trabajo surge de la necesidad de optimizar el proceso de determinación de los niveles ambientales de radiactividad en la atmósfera para muestras de aerosoles.

Habitualmente, la presencia de estos contaminantes en la atmósfera se controla en estaciones y laboratorios especializados. El Laboratorio de Análisis de Radiactividad (LARA) del Instituto de Técnicas Energéticas (INTE) forma parte de la red espaciada de estaciones de muestreo del Consejo de Seguridad Nuclear, organismo estatal con competencias en este ámbito. Además, también colabora en el control de calidad de los Planes de Vigilancia Radiológica Ambiental alrededor de las centrales nucleares catalanas.

El LARA ha venido desarrollando actividades en el campo de la medida de bajos niveles de radiactividad desde 1982. Y desde el año 1985, el laboratorio ha realizado ejercicios de intercomparación con organismos nacionales e internacionales.

1.2 Finalidad y objetivos

La finalidad del proyecto es la de mejorar la determinación de la concentración de aerosoles radiactivos en la atmósfera con muestreadores de bajo caudal. El trabajo se ha realizado en el Laboratorio de Análisis de Radiactividad Ambiental del INTE de la Universidad Politécnica de Cataluña (UPC).

Los muestreadores de bajo caudal son empleados habitualmente en los Planes de Vigilancia Radiológica Ambiental alrededor de las centrales nucleares, cuyos objetivos, de acuerdo con lo establecido por el Consejo de Seguridad Nuclear (CSN), son [2]:

- Detectar la presencia y vigilar la evolución de elementos radiactivos y de los niveles de radiación en el medio ambiente, determinando las causas de los posibles incrementos.
- Evaluar el riesgo radiológico potencial para la población.
- Determinar, en su caso, la necesidad de tomar precauciones o establecer alguna medida correctora.
- Verificar el cumplimiento de los requisitos fijados en las autorizaciones de las instalaciones.

Mediante estos sistemas se recoge en filtros el polvo atmosférico, siendo el periodo de captación de una semana con una tasa de aspiración baja ($\sim 2 \text{ m}^3/\text{h}$), cercana a la tasa de respiración de una persona tipo ($1,2 \text{ m}^3/\text{h}$). Cabe destacar, que al ser la cantidad de radiactividad captada en los filtros de los muestreadores de bajo caudal muy pequeña, se suele analizar la radiactividad contenida en los mismos mediante la medida de la actividad beta total en equipos específicos, como son los detectores proporcionales o los detectores de centelleo líquido. Adicionalmente, se agrupan todas las muestras

semanales correspondientes a un trimestre, y dicha muestra compuesta representativa de un trimestre se mide en equipos de espectrometría gamma.

Por tanto, en el desarrollo del trabajo, a partir del objetivo principal que consiste en optimizar la determinación de aerosoles radiactivos mediante muestreadores de bajo caudal, aparecen los siguientes objetivos secundarios:

- Estudio del proceso de la determinación de la concentración de aerosoles radiactivos.
- Propuesta de acciones de mejora en el proceso.
- Validación de la metodología propuesta.

1.3 Alcance del proyecto

En primer lugar se realizará un estudio de los procesos de determinación de la concentración de aerosoles radiactivos, tanto para muestras semanales como para muestras trimestrales.

Además, también se realizarán propuestas de optimización en los puntos susceptibles de ser modificados en dichos procesos y que se prevean mejoras. En particular se focalizará en el uso de estos sistemas para la medida de trazadores atmosféricos como el plomo-210, que permite realizar estudios del movimiento de masas de aire atmosférico.

Por último, se validará la metodología propuesta mediante la comparación de resultados beta y gamma a muestras homogéneas o ideales y a muestras heterogéneas o reales.

1.4 Antecedentes

En el pasado, la vigilancia radiológica-ambiental estaba muy focalizada en las áreas de influencia de las potenciales fuentes radiactivas artificiales y las escasas estaciones existentes se dedicaban básicamente al análisis local.

En Europa, el Tratado constitutivo de la Comunidad Europea de la Energía Atómica (EURATOM) firmado el día 25 de marzo del año 1957 formalizó las condiciones necesarias para la creación de una industria nuclear en el territorio de sus estados miembros, y estableció las medidas necesarias para la existencia de un mercado común en materia nuclear. Para el cumplimiento de su misión tiene asignadas desarrollar la investigación, establecer normas en materia de protección radiológica, promocionar el establecimiento de empresas comunes entre sus estados miembros y garantizar el uso pacífico de los materiales nucleares y el abastecimiento de combustibles nucleares, entre otras funciones, como la vigilancia radiológica ambiental.

Con el fin de afrontar los requisitos establecidos, diversos países crearon redes de vigilancia radiológica de ámbito nacional formadas por estaciones de medida de variables radiológicas y meteorológicas, encargadas de realizar el seguimiento de los niveles de radiación ambiental del aire, agua y suelo, con el propósito de detectar aumentos debidos a causas no naturales. Posteriormente, con el accidente de la central nuclear de

Chernóbil en el año 1986, se comprobó que el área de influencia de un accidente puede abarcar una zona muy vasta con independencia de los límites fronterizos nacionales, hecho que obligó a revisar los planes de vigilancia de la mayoría de países que se encontraban dentro del área de influencia radiológica aunque no dispusieran de dichas instalaciones.

A lo largo de los años, se han producido diversas modificaciones en la normativa de la EURATOM referente a los programas de vigilancia ambiental de acuerdo con la experiencia adquirida por los estados miembros.

En lo que se refiere a España antes de la entrada a la UE, la vigilancia radiológica ambiental estaba principalmente centrada en los emplazamientos de las instalaciones nucleares y su entorno. Con su incorporación a la UE en el año 1986 y, como consiguiente a EURATOM, y sumándole el accidente de Chernóbil que tuvo lugar pocos meses después, se hizo patente las carencias de los sistemas de vigilancia que garantizaran la seguridad y protección radiológica de la población frente a incrementos de los campos de radiación ionizante ambiental.

Surgió así la necesidad de crear una red de vigilancia radiológica a nivel estatal para cumplir con los requisitos del tratado de EURATOM y de esta manera monitorizar la dispersión de contaminantes radiactivos en la atmósfera y su influencia en la tasa de dosis ambiental.

La vigilancia radiológica del aire permite estimar la dosis potencial recibida por la población a causa de la inhalación. Debido a su rápida dinámica, y puesto que constituye el medio primario de recepción de los efluentes gaseosos emitidos a la atmósfera y una vía de transferencia transitoria de radionucleidos en el medio ambiente, en la mayor parte de los casos el muestreo, tanto de partículas de polvo en aire como de radioyodos, se realiza de modo continuo con cambio de filtros semanal. Los análisis realizados son de actividad beta total y espectrometría gamma [3].

2 Aerosoles

2.1 Introducción

Un aerosol se define como la suspensión de un conjunto de partículas ultramicroscópicas de sólidos o líquidos en el aire u otro gas [4]. Por tanto, sus propiedades pueden afectar tanto a la visibilidad y al clima en general, como también pueden tener influencia en la salud humana y la calidad de vida.

Los aerosoles son sistemas de dos fases, formados por las partículas y el gas en el cual se encuentran suspendidas. El tamaño de las partículas es el parámetro físico más importante para la caracterización de su comportamiento, ya que todas sus propiedades dependen de él. Su tamaño puede variar de los 0,001 a los 100 μm de diámetro. Se habla de diámetro ya que las partículas líquidas son esféricas y aunque las sólidas puedan tener formas más complejas se asume que son esféricas aplicando las correcciones adecuadas [5],[6].

Todas las partículas de aerosoles son formadas por condensación de gases o vapores o por procesos mecánicos. Estas partículas, al mismo tiempo que son transportadas por el aire son transformadas en partículas de mayor tamaño mediante los procesos de coagulación y de condensación [7],[8].

El proceso de eliminación depende del tamaño de la partícula. Para las partículas de mayor tamaño, la deposición en seco, que incluye los procesos de sedimentación e impacto, son los más importantes. En cambio, para las partículas de tamaño inferior, la deposición en húmedo, causada por las lluvias, es la que tiene una mayor importancia [8].

En la Figura 2 se puede observar el mecanismo de formación, crecimiento y eliminación explicado para los diferentes tamaños de partículas.

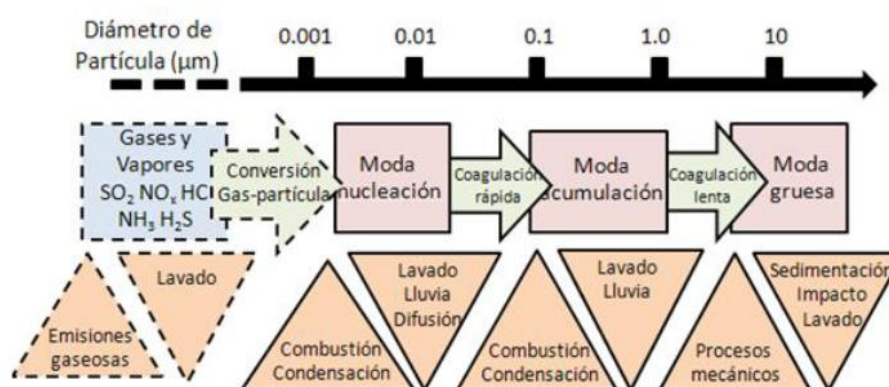


Figura 2. Mecanismos de formación, crecimiento y eliminación de los aerosoles [5].

La mayoría de los aerosoles atmosféricos están contenidos en la troposfera, aunque también se pueden encontrar en las capas bajas de la estratosfera. El tiempo de residencia de las partículas varía desde algunos días en la troposfera a un año o más en la estratosfera [7],[8].

2.2 Aerosoles radiactivos

Los radionucleidos existentes en la atmósfera se convierten en aerosoles radiactivos con el simple hecho de adherirse a un aerosol, como isótopos libres, óxidos o sales, participando así en su proceso de formación, crecimiento y eliminación.

Además de la radiactividad natural, no hay que olvidar la existencia de la radiactividad artificial, producida por los radionucleidos antropogénicos como consecuencia de la actividad humana.

Los aerosoles radiactivos, presentan un comportamiento y unas características similares a las de los aerosoles explicados anteriormente. Pero estos, atendiendo a los radionucleidos que transportan pueden ser clasificados en los siguientes grupos [7]:

- Radionucleidos de origen cosmogénico: ^7Be , ^{22}Na , ^{32}P y ^{35}S .
- Productos de desintegración del radón y del torón asociados con ^{218}Po , ^{214}Pb , ^{212}Pb , ^{210}Pb , ^{210}Bi y ^{210}Po .
- Productos de fisión asociados con ^{89}Sr , ^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{103}Ru , ^{131}I , ^{132}Te y ^{140}Ba .
- Aerosoles radiactivos asociados con los aceleradores de alta energía como ^7Be , ^{22}Na , ^{24}Na y ^{52}Mn .
- Aerosoles de plutonio procedentes de las pruebas de armas nucleares o accidentes de reactores nucleares.
- Aerosoles procedentes de explotaciones mineras.

Otro mecanismo de incorporación a los aerosoles consiste en que cuando un átomo radiactivo se desintegra, se forma un elemento radiactivo cargado con una gran capacidad de interaccionar con los gases y vapores presentes en la atmósfera y en tiempo menores a un segundo se forman agregados de átomos llamados clústeres. La gran mayoría de estos servirán como núcleos de condensación o bien se adherirán por coagulación a alguna partícula de aerosol ya existente, aunque una pequeña parte quedará como clúster libre. Este es el mecanismo de incorporación seguido en los descendientes del radón, mostrado también en la Figura 3, y el torón.

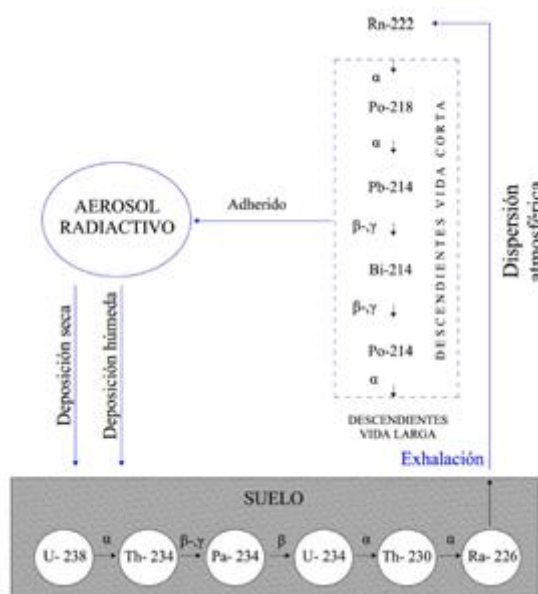


Figura 3. Ciclo del radón y sus descendientes.

La concentración de los diferentes radionucleidos en la atmósfera dependerá por una parte, de los parámetros propios del radionucleido, es decir, de las tasas y lugar de producción, de los mecanismos de transporte, del tiempo de semidesintegración y, para los que tengan un período de semidesintegración del mismo orden de magnitud que el tiempo de residencia del aerosol en la atmósfera, también dependerá de la deposición seca y húmeda. Por otro lado, la concentración también se verá afectada por las condiciones meteorológicas como la temperatura, las corrientes de convección en la troposfera y la dirección dominante de los vientos, entre otros.

Uno de los problemas que presentan los radionucleidos es que los aerosoles como consecuencia de sus mecanismos de eliminación de la atmósfera, se depositan sobre el suelo y van a parar a los acuíferos. Entonces, pueden entrar en la cadena trófica, formando así parte de los seres vivos, lo que significa que no solo estamos expuestos a ellos de forma externa por inhalación sino que también tenemos una exposición interna a través de la ingestión.

2.2.1 Radionucleidos de la corteza terrestre

La radiactividad de la corteza terrestre se encuentra formada por los radionucleidos primordiales y sus descendientes, en el caso de existir.

En la Tierra, actualmente, hay 288 nucleidos primordiales, de los cuales únicamente 34 son radiactivos. Aquellos radionucleidos que tienen un período de semidesintegración inferior a 10^8 años son indetectables una vez transcurridos unos 30 períodos desde su creación. Así pues, los radionucleidos primordiales existentes en la actualidad son aquellos que poseen períodos de semidesintegración del orden, como mínimo, de la edad del universo (aproximadamente unos 10^{10} años).

Dentro de los radionucleidos primordiales se pueden distinguir dos tipos: las familias radiactivas naturales y los radionucleidos naturales sin formación de cadena radiactiva.

Las familias radiactivas están formadas por una secuencia de radionucleidos relacionados a través de procesos de desintegración alfa y beta en cascada, encabezados por un precursor inicial que posee un período de semidesintegración muy elevado en relación con el de sus descendientes [9].

Existen cuatro series radiactivas naturales, de las cuales solo tres de ellas se encuentran en la naturaleza. Los elementos cabeza de serie de las tres familias radiactivas son: uranio-238, uranio-235 y torio-232. Las cadenas de desintegración de cada familia se muestran en las Figuras 4, 5 y 6 donde se observa como en cada uno de los procesos de desintegración radiactiva se llega a un nucleido final estable. La cuarta serie tiene por radionucleido inicial al plutonio-241 [10].

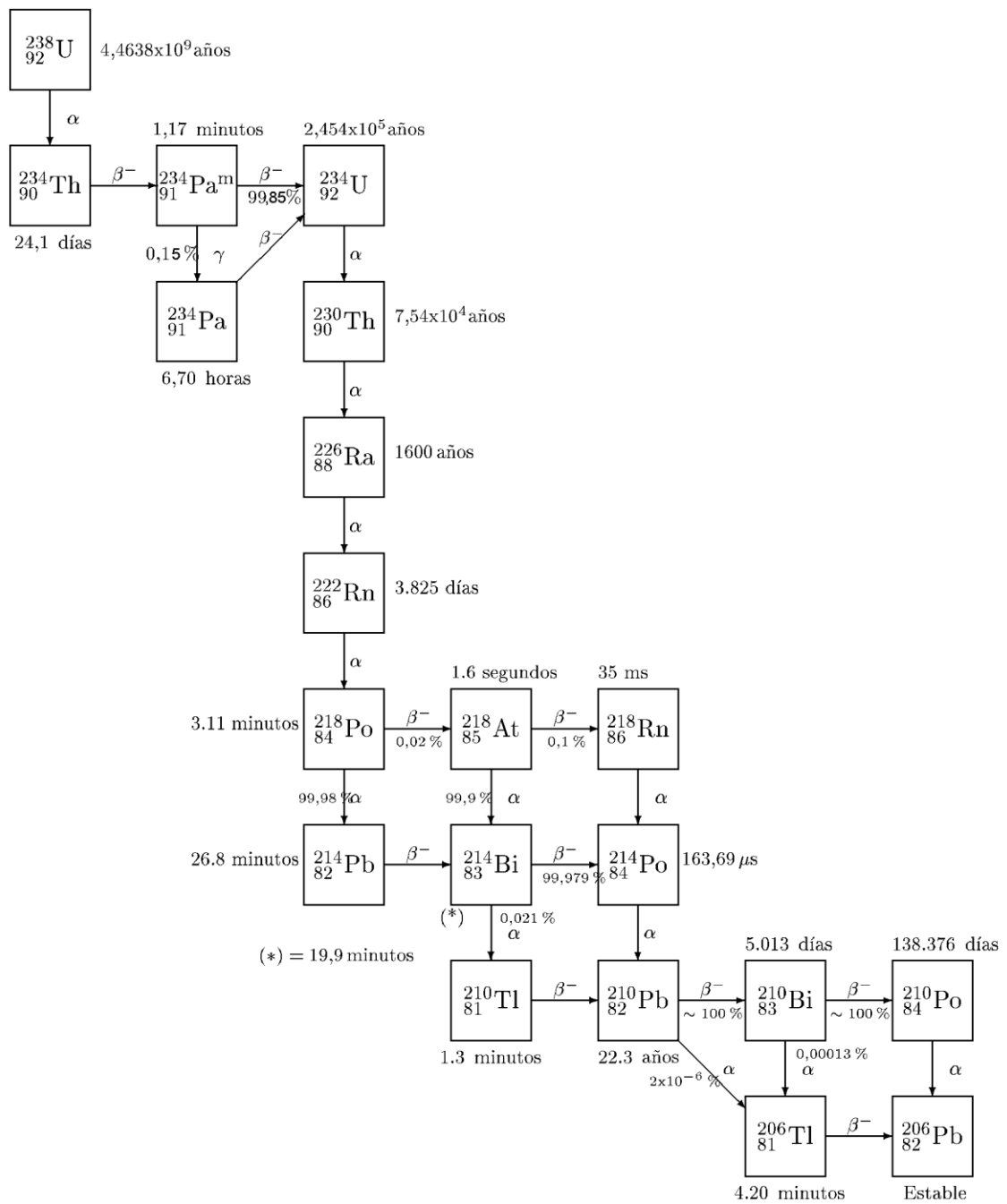


Figura 4. Cadena de desintegración del ^{238}U , donde se presentan las diferentes vías de desintegración, su probabilidad y período de semidesintegración.

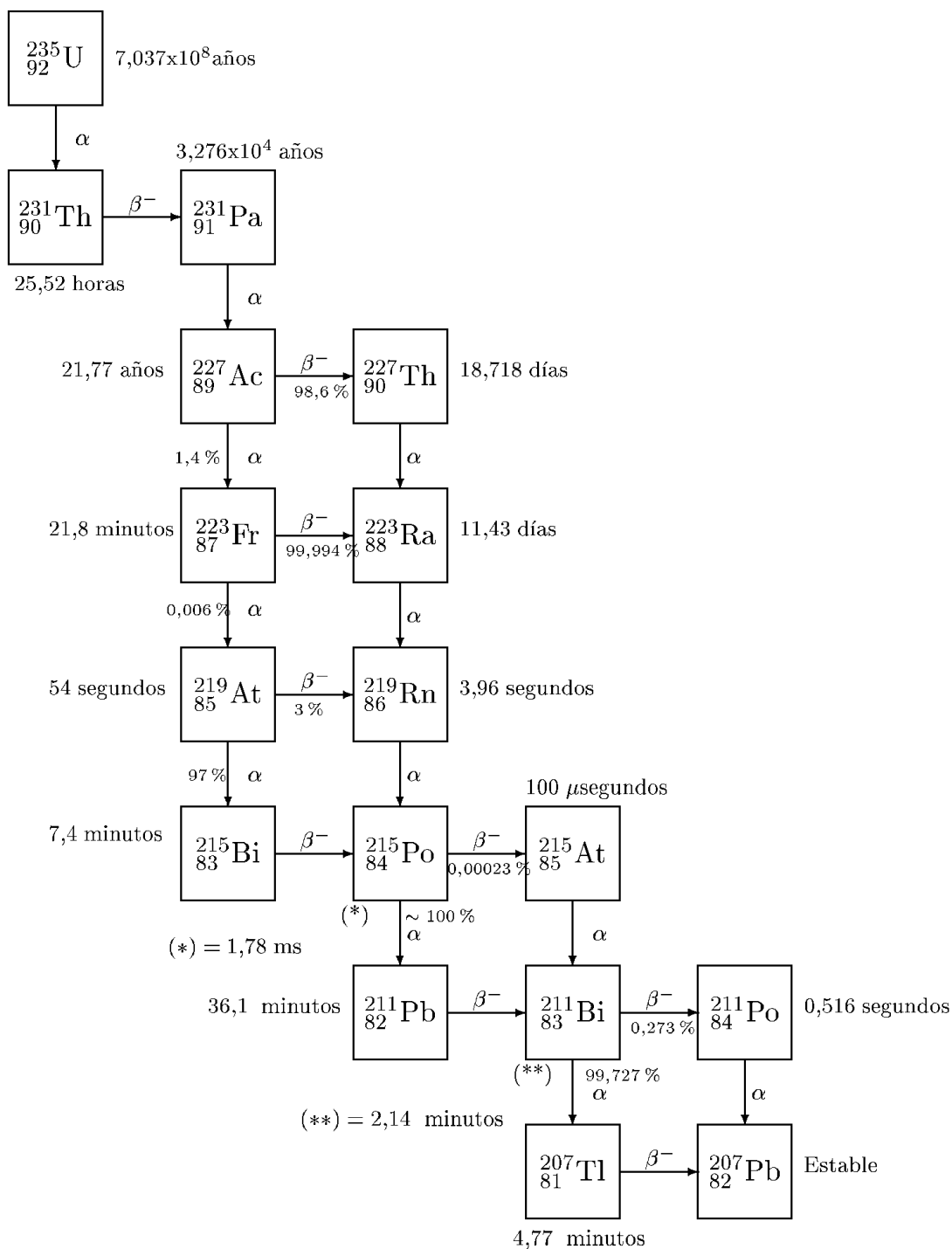


Figura 5. Cadena de desintegración del ^{235}U , donde se presentan las diferentes vías de desintegración, su probabilidad y período de semidesintegración.

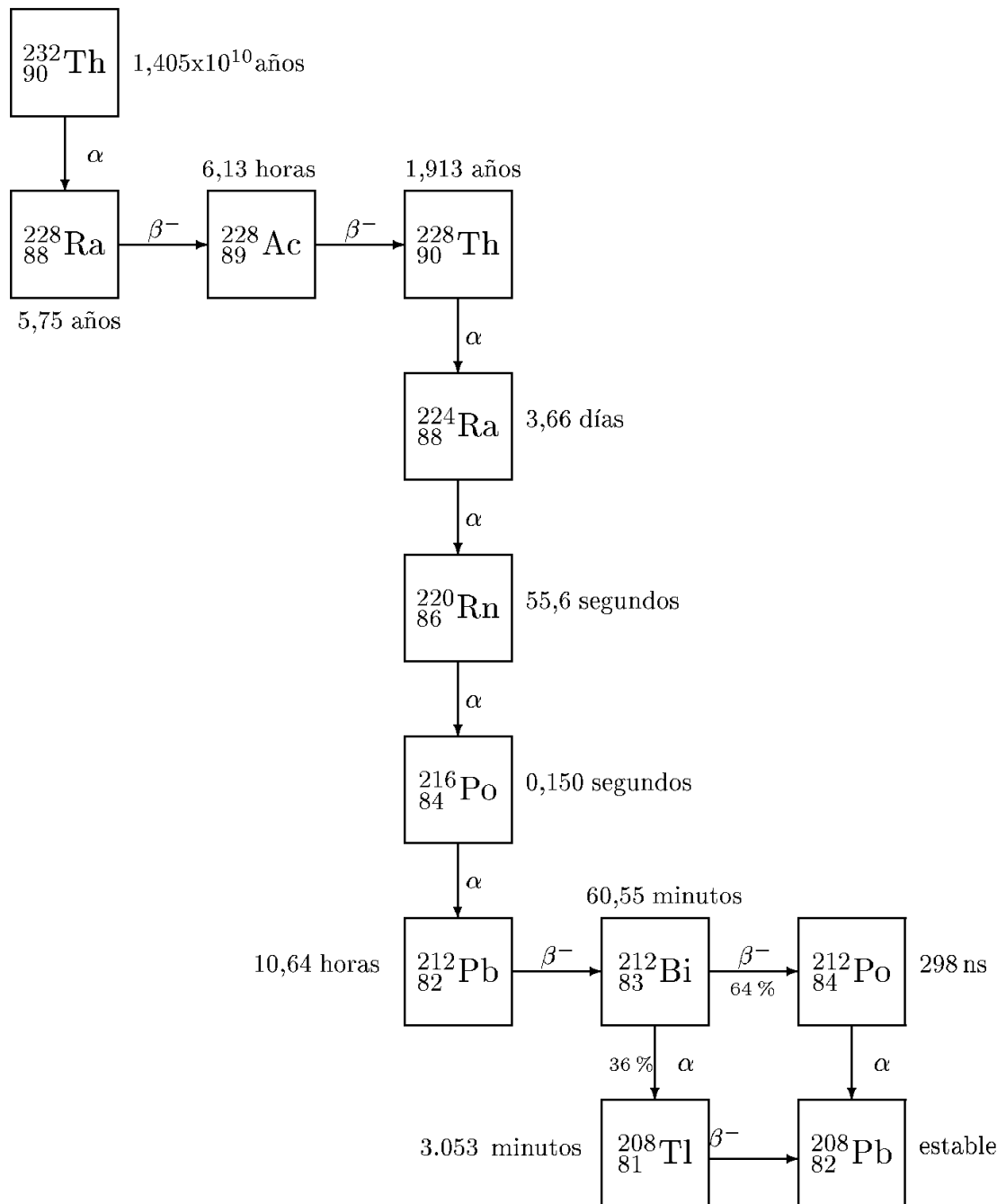


Figura 6. Cadena de desintegración del ^{232}Th , donde se presentan las diferentes vías de desintegración, su probabilidad y período de semidesintegración.

Respecto a las series radiactivas naturales se puede observar que están formadas por isótopos con periodos de semidesintegración muy distintos entre sí, en particular, con periodos extremadamente largos (miles de años) frente a periodos extremadamente cortos (días o incluso segundos), por lo que es de destacar que se cumple en muchos casos una relación de equilibrio secular entre los mismos.

El equilibrio secular ocurre, tal y como muestra la Figura 7, cuando en una cadena radiactiva el padre tiene una vida mucho más larga que el hijo y transcurrido un cierto tiempo, ambos presentan la misma actividad [11].

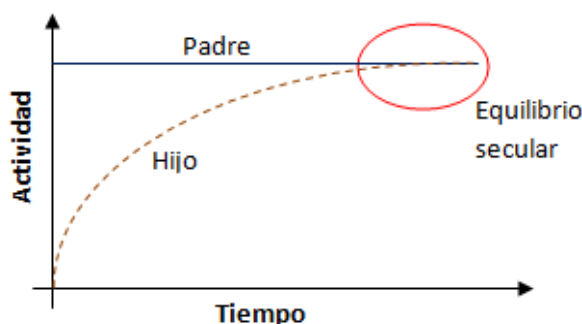


Figura 7. Gráfico del equilibrio secular.

En el caso de los radionucleidos naturales sin formación de cadena radiactiva y que, por ende, no forman parte de las series radiactivas naturales, los principales se muestran en la Tabla 1. En todos los casos, el nucleido resultante tras la desintegración es estable.

Tabla 1. Principales radioisótopos terrestres que no forman series radiactivas [9].

Isótopo	Modo de desintegración	Período (años)
$^{40}_{19}\text{K}$	CE, β^-	$1,28 \cdot 10^9$
$^{87}_{37}\text{Rb}$	β^-	$4,80 \cdot 10^{15}$
$^{115}_{49}\text{In}$	β^-	$4,41 \cdot 10^{14}$
$^{138}_{57}\text{La}$	CE, β^-	$1,06 \cdot 10^{11}$
$^{144}_{60}\text{Nd}$	α	$2,10 \cdot 10^{15}$
$^{147}_{62}\text{Sm}$	α	$1,06 \cdot 10^{11}$
$^{176}_{71}\text{Lu}$	β^-	$3,59 \cdot 10^{10}$
$^{187}_{75}\text{Re}$	β^-	$4,60 \cdot 10^{10}$

Los radionucleidos de interés desde el punto de vista de protección radiológica se dividen, de forma general, en emisores alfa y emisores beta, los cuales a su vez pueden emitir también radiación gamma.

La medida conjunta de ellos nos proporciona dos de los parámetros radiológicos más ampliamente utilizados en los estudios de Vigilancia Radiológica Ambiental, como son el *Índice de actividad alfa total* y el *Índice de actividad beta total*. Puesto que se trata de determinaciones totales, la actividad vendrá referida, porque así se ha convenido, al americio-241 en el caso del análisis alfa total y al Sr-90/Y-90 en el caso del análisis beta total, ya que en ese caso dichos isótopos son los de mayor interés [3].

A efectos de impacto radiológico, la dosis debida a los radionucleidos terrestres está causada principalmente por las cadenas del torio-232 y del uranio-238 y, por el potasio-40.

Desde el punto de vista de su abundancia en la atmósfera, la serie de mayor interés es la del uranio-238, en concreto, los productos de desintegración de la subserie del radón-222 de período largo, tal y como se muestra en la ecuación 1.



Como regla general, el flujo de plomo-210 proveniente de aerosoles, suele presentar una concentración mayor en verano que en invierno. Esto sucede como consecuencia de las elevadas temperaturas del verano, ya que el aire caliente próximo a la superficie terrestre tiende a ascender, produciéndose así un ciclo de circulación convectiva que transporta masas de aire con mayor concentración de plomo-210.

3 Instrumentación y metodología

3.1 Punto de muestreo

La radiactividad de las muestras de aerosoles depende de la situación del punto de muestreo, es decir, de la latitud y la longitud, de la altura, de la época del año y de las variables meteorológicas.

El aire analizado es el de la ciudad de Barcelona, situada en la costa mediterránea. El relieve del término municipal de Barcelona se encuentra caracterizado por las cuatro grandes barreras geográficas que lo rodean: el delta fluvial del río Llobregat en el sudoeste, el delta fluvial del río Besós en el nordeste, la línea de la costa en el sudeste y la sierra de Collserola en el noroeste.

Generalmente, los radioisótopos presentes en el aire son el berilio-7, el potasio-40, los descendientes del radón-222, el cesio-137, el sodio-22, entre otros. De muchos de ellos simplemente se encuentran trazas.

La toma de muestras se ha realizado en el terrado de las instalaciones del INTE, el cual se encuentra situado en el pabellón C de la Escuela Técnica Superior de Ingeniería Industrial de Barcelona (ETSEIB) situado en las coordenadas de latitud 41.38388 y longitud 2.11599 a unos 67 m de altura.

3.1.1 Características climatológicas

El conocimiento de la climatología en la zona de estudio es un parámetro muy importante para caracterizar el comportamiento de los aerosoles radiactivos, ya que estos varían según las condiciones climatológicas.

La ciudad de Barcelona tiene un clima mediterráneo húmedo, y una de las principales características del clima de la costa catalana es la irregularidad y la intensidad de sus precipitaciones. Las temperaturas son cálidas en el verano y suaves en el invierno, con una escasa oscilación térmica diaria. Generalmente hay dos ciclos de frío al año, uno antes de fin de año y otro durante el mes de febrero. También existe un régimen regular de vientos en el cual predominan los vientos procedentes del suroeste prácticamente durante todo el año pero sobretodo en la época de verano.

3.2 Descripción del captador de aerosoles

3.2.1 Equipo de captación de aerosoles de bajo caudal

El equipo de captador de aerosoles de bajo caudal empleado es un modelo LV-1E desarrollado por la empresa F&J SPECIALTY PRODUCTS, INC [12]. Este modelo, mostrado en la Figura 8, tiene un flujo de aire nominal de 2 m³/h y utiliza unos filtros de fibra de vidrio GF/A Whatman de 47 mm de diámetro y una superficie activa de 17,3 cm².



Figura 8. Muestreador de bajo caudal [12].

La bomba cuenta con un sistema para la autorregulación de su flujo de aspiración manteniendo una caída de presión constante, hecho que permite una larga duración de la vida útil del equipo. Además, al tratarse de una bomba sin aceite diseñada para uso continuo, no requiere de lubricación para mantener su eficiencia óptima.

Los filtros de fibra tienen un amplio uso en la toma de muestras ambientales y consisten en un entramado de fibras individuales. Las partículas que se recogen quedan retenidas en toda su estructura. Y en concreto, los de fibra de vidrio se caracterizan por tener una alta eficacia de retención de las partículas y por poseer unas buenas propiedades de adhesión.

La bomba cuenta con un sistema para la autorregulación de su flujo de aspiración manteniendo

3.3 Equipos empleados para la determinación de radiactividad

3.3.1 Laboratorio de Análisis de Radiactividad

Los análisis de los filtros obtenidos se han realizado en el Laboratorio de Análisis de Radiactividad (LARA) situado en el INTE. Este laboratorio forma parte de la red espaciada de estaciones de muestreo (REM) del Consejo de Seguridad Nuclear y también colabora en los Programas de Vigilancia de Radiación Ambiental (PVRA) de las centrales nucleares catalanas.

El LARA es un laboratorio acreditado por la Entidad Nacional de Acreditación (ENAC), según la norma UNE-EN ISO/IEC 17025:2005, que presta servicio de desarrollo de métodos de evaluación y vigilancia del impacto radiológico ambiental debido a la presencia de sustancias radiactivas en el medio ambiente.



Figura 9. Visión general del laboratorio de preparación de muestras.

En el laboratorio mostrado en la Figura 9 se realiza la preparación física de las muestras, y en el de la Figura 10 la medida de las actividades de las muestras. Este último laboratorio dispone de un sistema de ventilación forzada con la finalidad de mantener unas condiciones adecuadas de temperatura, humedad y concentración de radón en su interior.



Figura 10. Visión general del laboratorio de medida de muestras.

3.3.2 Contadores proporcionales alfa y beta de bajo fondo

Se utiliza un contador proporcional Berthold LB 770-2 existente en el LARA, que se muestra en la Figura 11, que permite medir simultáneamente actividad alfa y beta. Consta de 10 detectores en los cuales las muestras se colocan sobre unas planchetas, cada uno de ellos de 60 mm de diámetro y una altura aproximada de 8 mm. Poseen una ventana formada por una fina lámina mylar de $500 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ de espesor.



Figura 11. Contador proporcional Berthold LB 770-2.

Los contadores proporcionales se encuentran cubiertos por una barrera de plomo de 10 cm de espesor, mientras que el amplificador, provisto de un analizador de altura de impulsos que permite diferenciar entre partículas α y β , se encuentra situado fuera de dicha barrera de plomo.

Además, también consta de un *detector de guarda*, para minimizar la contribución de la radiación cósmica. Estos detectores están superpuestos, encerrados en el blindaje de plomo y disponen de un flujo continuo de gas para que actúen en régimen proporcional.

El detector guarda está ubicado directamente encima del detector principal, siendo sensible a las radiaciones ionizantes de gran poder de penetración. Dicho detector está diseñado de manera que las partículas α y β procedentes de la muestra no atraviesan sus paredes, trabajando en anticoincidencia con los detectores principales, y por consiguiente, aquellos eventos ionizantes que sean detectados al mismo tiempo por el

detector guarda y los detectores principales serán eliminados. Esta configuración permite reducir notablemente la contribución del fondo radiactivo ambiental.

El funcionamiento de estos detectores se basa en la ionización producida por las partículas alfa y beta en el interior del volumen de detección, trabajando polarizados en la zona proporcional, ya que de esta manera se aprovecha el efecto multiplicador del campo eléctrico.

El gas empleado para la medida es el denominado PR-10, mezcla de gran pureza de argón y metano, con un 90 % de argón y un 10 % de metano.

En el LARA la calibración de los detectores para la medida de actividad total alfa de este equipo se realiza mediante un patrón de ^{241}Am mientras que para la calibración de los detectores para la medida de actividad total beta se utiliza un patrón de $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ en equilibrio secular.

Para realizar la medida en modo simultáneo, tal y como se expone en la Figura 12, el contador proporcional dispone de dos ventanas, una para la medida de la actividad alfa y otra para la actividad beta. Una partícula alfa que atraviesa un medio material, produce una mayor ionización específica que una partícula beta de la misma energía, debido a su mayor masa en reposo y carga. Los valores obtenidos son de actividad alfa total y beta total.

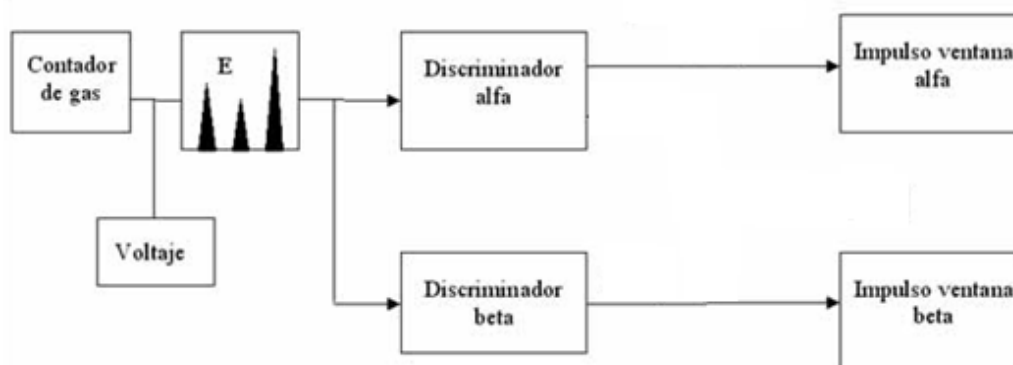


Figura 12. Diagrama del proceso de medida simultáneo en un contador proporcional LB-770-2 [13].

3.3.3 Detectores de espectrometría gamma de alta resolución

Los detectores de semiconductor son empleados tanto para la detección de fotones como para la detección de partículas cargadas. Su principal propiedad es que poseen la capacidad de diferenciar radiaciones de energías muy próximas.

La detección de radiación mediante semiconductores se basa en la detección de los portadores de carga (electrones y huecos), generados en el semiconductor como consecuencia de la energía depositada por el fotón de un rayo gamma. Los electrones del semiconductor se encuentran en la banda de valencia del cristal, hasta que la interacción con un rayo gamma aporta la energía suficiente para desplazar dicho electrón

a la banda de conducción. Seguidamente, gracias a la acción de un campo eléctrico exterior, los electrones que se encuentran en la banda de conducción se desplazan del cristal hasta el electrodo positivo. El desplazamiento de un electrón provoca un hueco que será cubierto por un electrón próximo. De esta manera, los huecos se mueven hacia el electrodo negativo. La llegada del electrón y el hueco a los electrodos positivo y negativo respectivamente producirán una señal eléctrica que será enviada a un preamplificador donde seguirá toda la cadena electrónica hasta ser procesada.

Los detectores empleados para determinar la actividad gamma en este trabajo son los detectores de germanio de alta pureza o germanio intrínseco modelo Canberra HPGe GX3020, mostrado en la Figura 13. En la Tabla 2 se presentan las principales características de los diferentes detectores presentes en el LARA.

Tabla 2. Principales características de los detectores de Germanio del LARA.

	Ge-3	Ge-4	Ge-5
Tipo	Coaxial invertido tipo n	Coaxial ventana criostato berilio tipo p	Coaxial ventana criostato carbono epóxido tipo p
Modelo	GR2020	GX3020	GX4020
Volumen cristal Ge (cm³)	98	137	171
Eficiencia relativa (%)	23,2	33,0	40,9
Blindaje primario	Plomo (10 cm)	Hierro (14,4 cm)	Plomo (10,5 cm)
Blindaje secundario	Cobre (2 mm)	-	Cobre (2 mm)

El detector es el elemento fundamental del sistema de detección, ya que es el elemento sensible a la radiación y presenta como característica fundamental que la energía depositada en él por los fotones gamma es proporcional a la altura de los impulsos eléctricos que suministra como respuesta.



Figura 13. Detector de espectrometría gamma con su depósito de nitrógeno líquido.

El detector se halla ubicado en el interior de un recipiente, denominado criostato, en el que se ha practicado el vacío. Dicho detector está en contacto térmico con un volumen de nitrógeno líquido a 77 K por medio de una barra, denominada *dedo frío*. El preamplificador se sitúa inmediatamente debajo del detector, de forma que la etapa de entrada del preamplificador se mantiene a baja temperatura.

El funcionamiento del detector a baja temperatura asegura que el nivel de ruido asociado a los impulsos eléctricos originados en el detector sea muy bajo y además, evita la creación de pares electrón-hueco por agitación térmica. Con todo ello, se consigue una resolución energética óptima.

El nitrógeno líquido se halla contenido en el interior de un recipiente Dewar que aísla térmicamente a este del ambiente exterior mediante la utilización de materiales aislantes en las paredes del recipiente. Por otro lado, el aislamiento del criostato, y por tanto del detector en él contenido, se consigue practicando el vacío en su interior.

El detector de semiconductor que opera a bajas temperaturas explicado anteriormente dispone una configuración similar a la mostrada en la Figura 14.

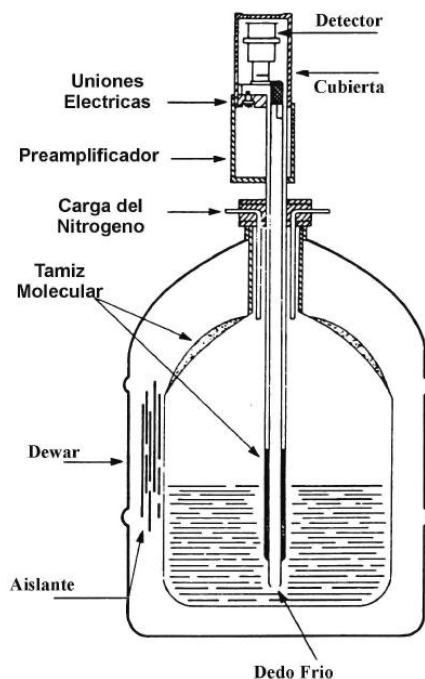


Figura 14. Configuración típica de un detector de germanio incluyendo el criostato y el recipiente Dewar [14].

3.3.3.1 Calibración

Después de que los impulsos eléctricos generados por el detector sean amplificados, procesados y analizados por la cadena electrónica asociada, se obtiene un espectro con varios picos. La altura de estos picos vendrá dada por el número o cuentas de rayos gamma detectados. Dichos picos se clasificarán en un canal el cual se representará en el eje X y será función de la energía de los rayos gamma incidentes. Por lo que se requerirá de un programa de análisis de espectros con la finalidad de convertir los picos y el canal donde se hallan, en los radionucleidos presentes y su actividad.

El programa de análisis empleado en este trabajo es el Genie-2000, el cual permite la calibración de la cadena de espectrometría gamma para múltiples energías, además de obtener toda la información necesaria para la identificación y cuantificación de los emisores gamma presentes en la muestra analizada.

La calibración de un detector de espectrometría gamma de alta resolución es un procedimiento que consta de dos fases: calibración en eficiencias y calibración en energías.

La calibración en energías tiene como objetivo establecer una relación entre los canales del espectro y la energía de emisión de los rayos gamma. Para esto, es necesaria una serie de fuentes patrón que contienen radionúclidos que emiten rayos gamma en el rango energético de trabajo, en nuestro caso, de 40 y 2.000 keV.

La calibración en eficiencias tiene como objetivo conocer la eficiencia de detección que posee el detector de germanio, en el rango energético de trabajo y de la geometría de la muestra a analizar. Una vez esta eficiencia es conocida, se podrá relacionar la actividad

medida con la actividad real de la muestra. Para ello, se utilizan patrones gamma con una geometría de igual forma y densidad que la propia muestra que se pretende analizar.

La elaboración de estos tipos de patrones se realiza utilizando una mezcla de emisores gamma de diferentes energías, siguiendo los procedimientos del informe técnico del CSN "Selección, preparación y uso de patrones para espectrometría gamma" [15].

Además de las calibraciones en energías y en eficiencias de los detectores, se deben tener en cuenta la contribución de la actividad causada por el fondo radiológico ambiental, es decir, los radioisótopos presentes en el ambiente, y restarla a la actividad de la muestra con el fin de obtener la actividad real.

4 Resultados

4.1 Estudio del proceso

4.1.1 Muestras semanales

El proceso llevado a cabo para la determinación de la concentración de aerosoles radiactivos en muestras semanales mediante la actividad beta total contiene cuatro partes claras, expuestas en la Figura 15, y que se analizan a continuación.

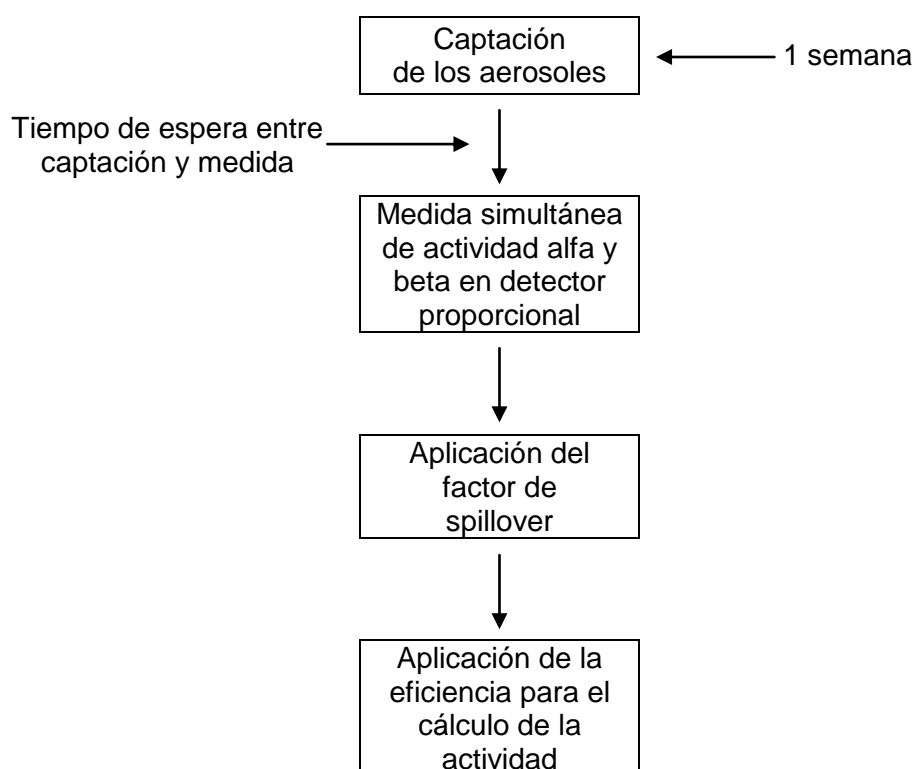


Figura 15. Esquema del proceso para la determinación de la concentración de aerosoles radiactivos en muestras semanales.

En primer lugar se realiza la captación de aerosoles durante 1 semana que contiene diversos aerosoles radiactivos. En la publicación de Vallés et al. [16] se detallan los radionucleidos detectados en aerosoles de la ciudad de Barcelona con un muestreador de alto caudal. El berilio-7, de origen cosmogénico, es el isótopo radiactivo que presenta una mayor concentración en aire, tal y como se puede observar en la Tabla 3 y la Figura 16, seguido del plomo-210 y en menor medida el potasio-40, ambos de origen terrestre.

Tabla 3. Concentraciones aproximadas de diversos radionucleidos en la ciudad de Barcelona [16].

Ciudad	^7Be (mBq·m ⁻³)	^{210}Pb (mBq·m ⁻³)	^{40}K (mBq·m ⁻³)	^{137}Cs (μBq·m ⁻³)
Barcelona	3,5	0,50	0,075	0,65

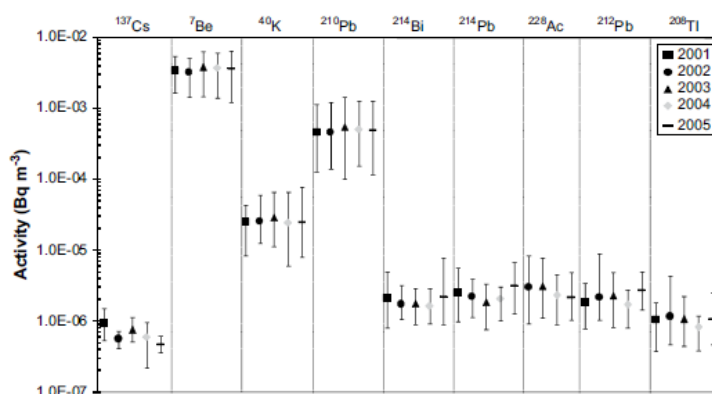


Figura 16. Gráfico con las concentraciones de diversos radionucleidos en la ciudad de Barcelona [16].

En el caso particular del objeto de este trabajo, con los muestreadores de bajo caudal empleados habitualmente en los Planes de Vigilancia Radiológica Ambiental, la cantidad de radiactividad captada durante el periodo de muestreo típico de una semana, es muy pequeña, por lo que se suele realizar la medida de la actividad beta total en equipos específicos, como son los detectores proporcionales o los detectores de centelleo líquido, tal y como se ha detallado en el capítulo anterior.

Dado que dichos equipos presentan una eficiencia de detección para emisores de fotones muy baja, y el berilio-7 se desintegra por captura electrónica con la consiguiente emisión de un fotón de 477 keV, al realizar la determinación de la actividad beta total del polvo atmosférico captado, la mayor contribución corresponderá al plomo-210 que es un emisor beta-gamma en situación rutinaria. Así pues, el plomo-210 será el radionucleido de interés mayoritario en este trabajo.

Una vez, realizada la captación se coloca el filtro en una plancheta con su correspondiente aro, como muestra la Figura 17.



Figura 17. Filtro semanal colocado en una plancheta.

Entonces se espera un tiempo (tiempo de espera entre captación y medida) antes de realizar la medida simultánea de la actividad alfa total y la beta total. Pasado dicho tiempo, el filtro se coloca para su medida en un detector proporcional.

Para comprender en profundidad el porqué de este tiempo de espera y qué se está detectando en el detector recordemos que el gas noble radón-222 de reactividad química prácticamente nula existente en la atmósfera se desintegra generando plomo-210 a través de una serie de radionucleidos de períodos muy cortos. Este, tal y como se muestra en la Figura 18, mediante emisiones β^- pasa a su nivel excitado y, seguidamente, a su nivel fundamental del bismuto-210.

Además, el bismuto-210, también a través de emisiones β^- , se desintegra completamente en polonio-210 emitiendo electrones con una energía significativamente superior a la energía de los electrones emitidos por el plomo-210.

Dado que la mayoría de los detectores proporcionales empleados para la medida de la actividad beta total presentan una eficiencia de detección muy baja para los electrones emitidos por el plomo-210, en general se espera a que el plomo-210 se encuentre en equilibrio secular con el bismuto-210, de tal modo que en verdad, para determinar la concentración de plomo-210 en el aire, se mide el bismuto-210 y se asigna al plomo-210 dicha actividad.

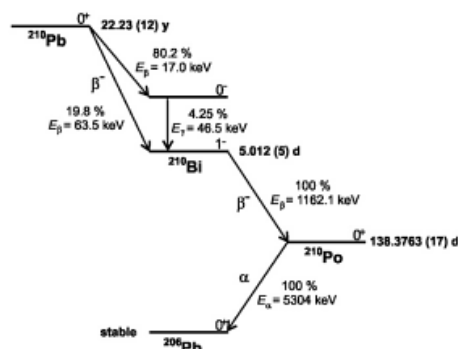


Figura 18. Diagrama de la cadena de desintegración simplificada del ^{210}Pb .

Así, las determinaciones cuantitativas del plomo-210 se llevan a cabo mediante la medición de las emisiones beta del bismuto-210 o mediante la medición de las emisiones alfa del polonio-210 siempre y cuando se haya establecido previamente el equilibrio secular entre ambos radionucleidos.

A continuación, a partir de las cuentas por minuto obtenidas, se aplica un factor de spillover (FI) adimensional y una eficiencia (cpm/Bq) para finalmente obtener el valor de la actividad beta total a partir de la ecuación 2.

$$A_{\beta} = (\text{cpm}_{\beta(\text{netas})} - \text{FI} \cdot \text{cpm}_{\alpha(\text{netas})}) / \text{Ef} \quad (2)$$

Donde a los recuentos de la muestra se ha sustraído el valor del fondo radiológico medido por el equipo, que aparece debido principalmente a la radiación cósmica que

llega al detector y a la concentración de radón y sus descendientes en la sala de medida en la que se ubica.

4.1.2 Muestras trimestrales

Como se ha comentado con anterioridad, adicionalmente a la medida de los filtros resultado de los muestreos semanales, se agrupan todas las muestras semanales correspondientes a un trimestre, y dicha muestra compuesta representativa de un trimestre se mide en equipos de espectrometría gamma. En dicha muestra compuesta es posible determinar el plomo-210 a través de sus rayos gamma de 46,5 keV. Mediante la espectrometría gamma también es posible determinar la concentración de berilio-7 y potasio-40, así como otros emisores gamma que pudieran estar presentes en la muestra.

El proceso llevado a cabo para la determinación de la concentración de aerosoles radiactivos en muestras trimestrales contiene tres partes claras, expuestas en la Figura 19, y que se analizan a continuación.

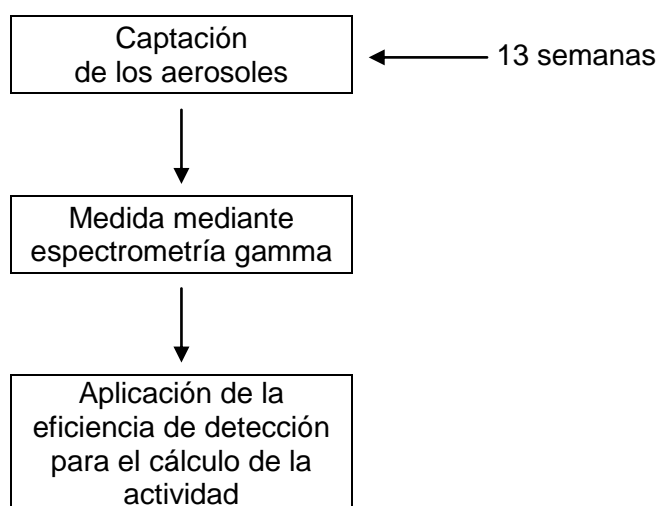


Figura 19. Esquema del proceso para la determinación de la concentración de aerosoles radiactivos en muestras trimestrales.

En primer lugar, se realiza la captación de aerosoles durante 13 semanas, obteniendo un filtro por semana, y se colocan los 13 filtros juntos en un mismo recipiente, como muestra la Figura 20. Seguidamente se realiza una medida mediante espectrometría gamma. A continuación, se aplica una eficiencia para finalmente obtener el valor de la actividad.

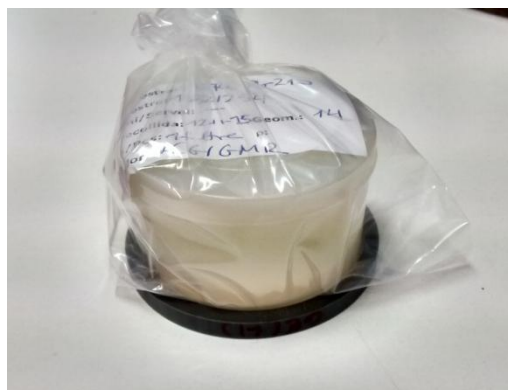


Figura 20. Filtros trimestrales colocados en un recipiente.

4.2 Detalle de las propuestas de las acciones de mejora

A partir de la Figura 17 y 19, se pueden detectar los puntos susceptibles de mejora tanto para muestras semanales como para trimestrales. En los siguientes apartados de este capítulo se explicarán cada uno.

4.2.1 Muestras semanales

En el proceso de muestras semanales el estudio del factor de spillover, la eficiencia de detección y el tiempo de espera entre captación y medida son las principales etapas para proponer mejoras. Además, también se estudiarán otros isótopos que puedan estar presentes en las muestras y que pueden interferir en su medida.

4.2.1.1 *Spillover*

Mediante la técnica de separación de impulsos que emplea el contador proporcional utilizado y, descrito en el apartado 3.3.2, todos los impulsos medidos en la ventana alfa se encuentran en la ventana beta, y algunos impulsos beta pueden aparecer en la ventana alfa. Este fenómeno se denomina spillover y puede alterar la fiabilidad de la medida, por lo cual es necesario corregirlo para poder determinar de forma correcta la actividad de una muestra que contenga emisores alfa y beta simultáneamente.

Actualmente, el LARA aplica el factor de spillover calculado para una fuente de americio-241, isótopo de referencia en caso de accidente nuclear. Se propone estudiar el factor de spillover del polonio-210 debido a que, de acuerdo con lo indicado anteriormente, es el isótopo emisor alfa existente en las muestras rutinarias y tiene un esquema de desintegración ligeramente distinto al del americio-241 (ver Tabla 4).

El polonio-210 es un emisor prácticamente alfa puro con una energía de sus partículas alfa ligeramente inferior a las emitidas por el americio-241, el cual, adicionalmente emite fotones en el rango de 14 a 60 keV con una alta probabilidad, tal y como se puede observar en la Tabla 4.

Tabla 4. Principales emisiones y su energía en keV del Americio-241 y Polonio-210.

		Gamma o X		Beta ($E_{\text{máx.}}$)		Electrones		Alfa	
		E	%	E	%	E	%	E	%
Am-241	E1	14	13	-	-	-	-	5.388	1,4
	E2	18	18	-	-	-	-	5.443	12,8
	E3	60	36	-	-	-	-	5.486	85,2
	% suprimido		8,2		-		-		< 1
Po-210	E1	803	< 1	-	-	-	-	5.304	100
	E2	-	-	-	-	-	-	-	-
	E3	-	-	-	-	-	-	-	-
	% suprimido		0		-		-		0

En la Tabla 5 se muestran los valores del factor de spillover para ambos isótopos. Es conveniente indicar que mientras que el spillover del americio-241 es un valor experimental, el valor del spillover del polonio-210 es el indicado en el manual del equipo debido a que en la actualidad no disponemos de un patrón de polonio-210.

Tabla 5. Isótopos con su correspondiente factor de spillover.

Isótopo	Spillover
Am-241	1,26
Po-210	1,03

Así pues, el primer cambio a realizar en el proceso de optimización de la determinación de aerosoles es el del spillover utilizado actualmente en el LARA de 1,26 a 1,03 en el cálculo de la actividad beta total, ya que este es el adecuado para la determinación del plomo-210 a través del polonio-210.

4.2.1.2 Eficiencia de detección

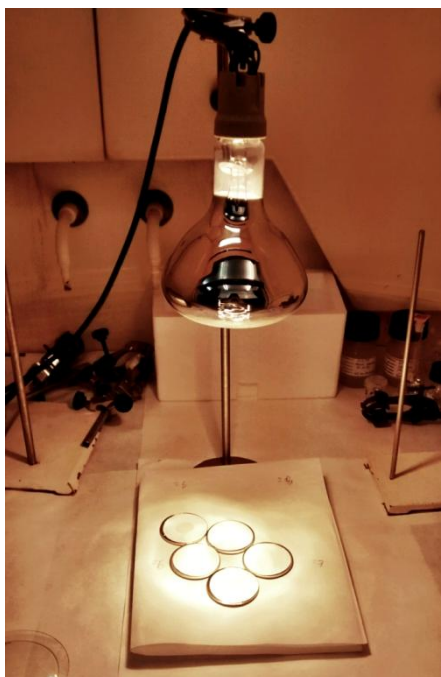
Actualmente, el LARA aplica para el cálculo de la actividad beta la eficiencia determinada para el estroncio-90, isótopo de referencia en caso de accidente nuclear. No obstante, dado que el plomo-210 en equilibrio secular con bismuto-210 es el componente mayoritario existente en las muestras rutinarias, se propone calcular la eficiencia de estos radionucleidos y compararla con el valor utilizado hasta ahora.

En la Tabla 6 se indican las principales emisiones del plomo-210 y el bismuto-210, además del estroncio-90 en equilibrio secular con el itrio-90, y se puede observar como tienen un esquema de desintegración ligeramente distinto.

Tabla 6. Principales emisiones y su energía en keV del Plomo-210, Bismuto-210 y Sr-Y.

		Gamma o X		Beta ($E_{\text{máx.}}$)		Electrones		Alfa	
		E	%	E	%	E	%	E	%
Pb-210	E1	13	25	17	80	30	58	3.720	< 1
	E2	47	4	63	20	43	13	-	-
	E3	-	-	-	-	46	4	-	-
	% suprimido		0		0		0		0
Bi-210	E1	-	-	1161	100	-	-	-	-
	E2	-	-	-	-	-	-	-	-
	E3	-	-	-	-	-	-	-	-
	% suprimido		-		0		-		-
Sr-Y	E1	-	-	523	< 1	-	-	-	-
	E2	-	-	546	100	-	-	-	-
	E3	-	-	2284	100	-	-	-	-
	% suprimido		-		0		-		-

Para llevar a cabo esta actividad, se han preparado 13 patrones, algunos mostrados en la Figura 21 durante su preparación. Cada patrón ha sido impregnado con 0,2 mL de la disolución de plomo-210 con referencia LARA 254/12 con una actividad certificada de $4,33 \pm 0,05$ Bq/mL tomando una $k=1$ para la incertidumbre. De manera que cada filtro contiene una actividad de plomo-210 de $0,866 \pm 0,012$ Bq.

**Figura 21.** Preparación de los patrones.

Mediante dichos patrones medidos con el contador proporcional, se ha obtenido una eficiencia promedio de 0,609 con una incertidumbre de 0,014 calculada a partir de la ecuación 3 para cada filtro y luego realizando el promedio de los 13 filtros.

$$Ef = \frac{cpm'_{beta}}{A \cdot 60} \quad (3)$$

donde,

Ef es la eficiencia de la muestra, en cpm/dpm;

cpm'_{beta} es la tasa de recuento beta neta de la muestra, en cpm;

A es la actividad de patrón impregnada, en este caso 0,866 Bq/filtro.

En la Tabla 7 se muestran ambas eficiencias. Como se puede observar, la eficiencia obtenida difiere un 21,5 % con respecto a la del patrón de Sr-90/Y-90 empleado inicialmente.

Tabla 7. Comparación de las eficiencias de detección.

Eficiencia Sr-90/Y-90	Eficiencia Pb-210/Bi-210	Diferencia (%)
0,501	0,609	21,5

4.2.1.3 Tiempo de espera para el recuento

Actualmente, el LARA deja un tiempo de espera entre captación y medida de como mínimo 7 días para el establecimiento del equilibrio secular entre el plomo-210 y su descendiente el bismuto-210 y, también para el decaimiento de los descendientes del radón. Para comprobar experimentalmente si esta asunción es correcta, se ha optado por analizar la evolución temporal de un filtro desde su inicio.

Durante una semana, del día 11 al 18 de noviembre de 2015, se realizó la captación semanal de aerosoles con el muestreador de bajo caudal y se recogió el filtro correspondiente, como si de un muestreo semanal habitual se tratase. En la Figura 22 se grafica la evolución temporal detectada con el contador proporcional desde el día 18 de noviembre del 2015 y durante los siguientes días.

Inicialmente se programan ciclos cortos de 30 minutos, para poder observar bien la desaparición de ciertos radionucleidos con un período de semidesintegración muy corto. Luego, de forma gradual, se aumenta la duración de dichos ciclos hasta llegar a ciclos de 1400 minutos que es el tiempo que se utiliza de forma habitual para la medida de este tipo de muestras.

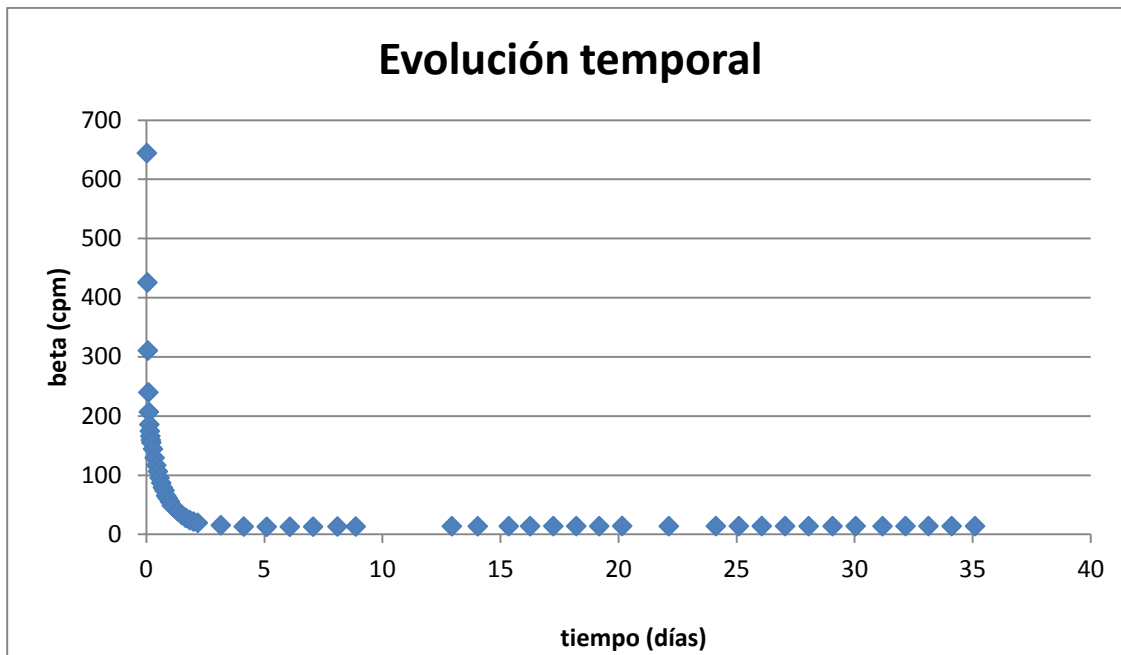


Figura 22. Gráfico de la evolución temporal de un filtro.

De forma clara, en la Figura 22, se aprecia una caída muy pronunciada de cuentas durante las 48 primeras horas, debida a los isótopos de vida muy corta. A los 5 días, ya se dan por desaparecidos de forma total los descendientes de vida corta del radón.

Así pues, la variación que se pueda observar a partir de ahora, principalmente es la del bismuto-210 no soportado o, dicho de otra forma, el que no se encuentra en equilibrio con el plomo-210. Esto se debe a que en el aire hay plomo-210, pero también bismuto-210 que se va desintegrando durante el propio muestreo.

Como la escala de la Figura 22 no es la adecuada para observar las variaciones producidas a partir del día 3, se ha procedido a ampliar únicamente la zona a partir de ese día tal y como se muestra en la Figura 23. Además, se han añadido los valores de la incertidumbre de la medida y, una línea roja con el promedio de los valores obtenidos a partir del día 13, momento en el cual se estabilizan los resultados.

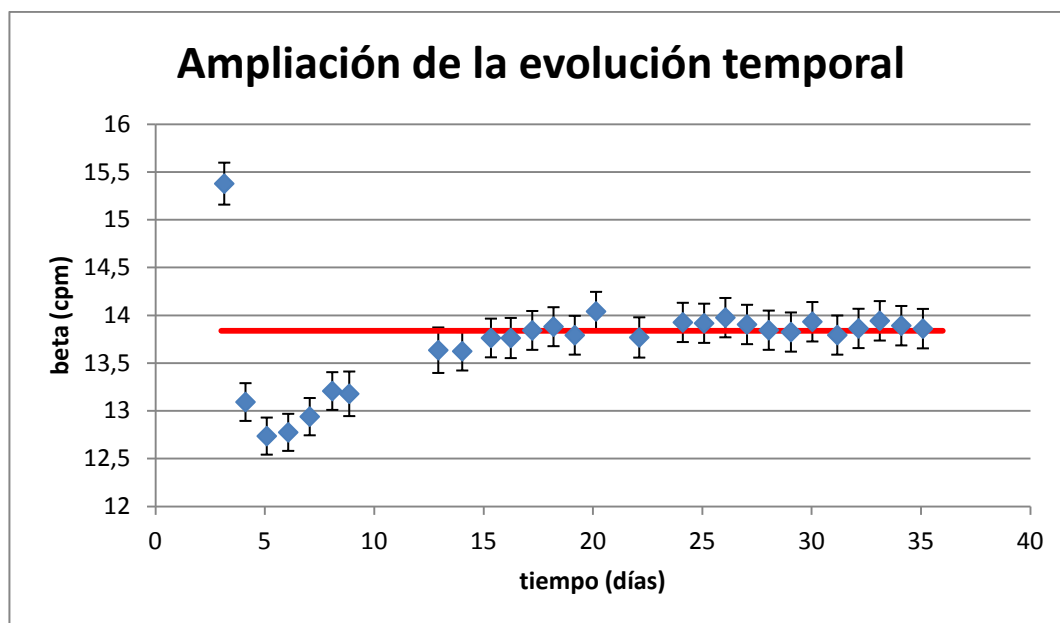


Figura 23. Gráfico de la evolución temporal ampliado a la escala adecuada.

Como se puede observar en la Figura 23, realizar la medida a los 7 días supone realizar una subestimación de un 8 % respecto a medir a partir del día 13.

Por lo tanto, la propuesta de mejora es realizar la medida cuando hayan transcurrido como mínimo 15 días desde la toma de muestra.

4.2.1.4 Investigación de otros isótopos presentes en las muestras

El LARA es un laboratorio que pertenece a la red espaciada de estaciones de muestreo, como se ha explicado en el apartado 3.3.1, por lo que se conoce semanalmente con alta precisión la concentración de berilio-7 y de potasio-40 existente en el aire que son los radioisótopos con mayor porcentaje, gracias a un muestreador de aire de alto caudal ($\sim 700 \text{ m}^3/\text{h}$) que funciona de forma habitual.

Como ya ha sido comentado, los detectores proporcionales empleados para la medida de la actividad beta total de los filtros tienen una eficiencia de detección muy baja para emisores de fotones, si bien de considerarse la posibilidad que dicho tipo de emisiones pueda interferir en la medida.

Con este fin se realizó la captación semanal de aerosoles con el muestreador de bajo caudal y se recogió el filtro correspondiente sincronizadamente con la medida semanal de los filtros procedentes del muestreador de alto caudal. Dado que el berilio-7 tiene un periodo de semidesintegración corto (53 días), puede evaluarse su impacto en la medida beta realizando la medida de los filtros semanales transcurridos diversos intervalos de tiempo: el periodo habitual de espera de un mínimo de 7 días, a los tres meses y a más de un año.

En la Figura 24 se presenta el gráfico de tres muestras distintas comparándose el decaimiento de berilio-7 versus el decaimiento de la actividad de beta total. Se puede

observar como hay una influencia clara del decaimiento del berilio-7 sobre la medida de la actividad beta total detectada durante un año. En las muestras analizadas, la variación observada en la actividad beta total ha sido una disminución del 20 %.

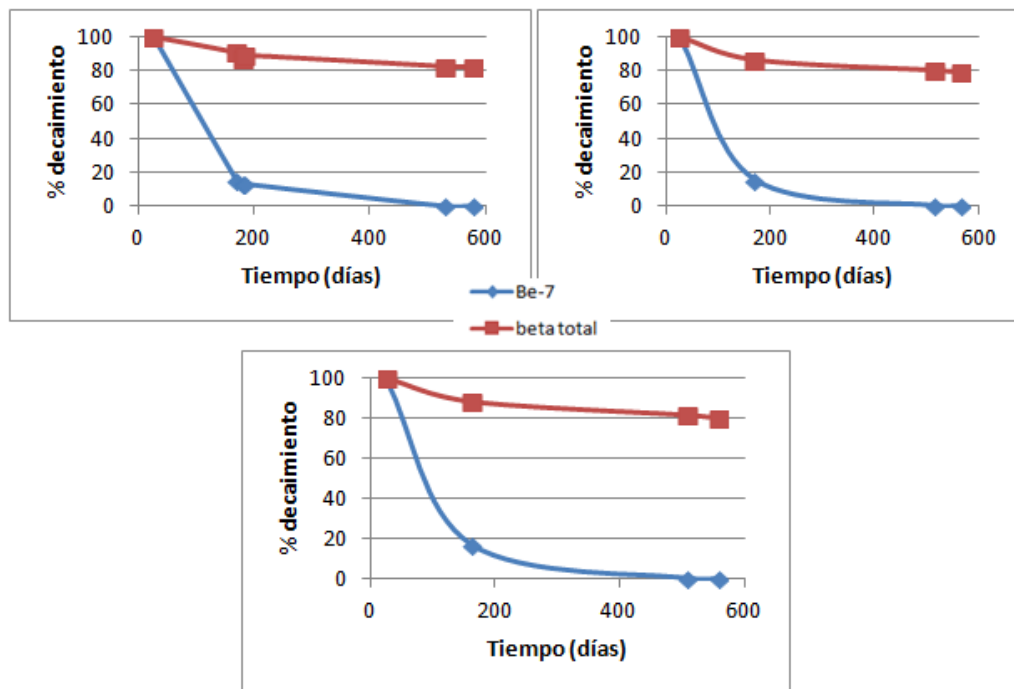


Figura 24. Gráfico del decaimiento del Be-7 y la beta total para tres muestras distintas.

Así pues, el berilio-7 tiene influencia en el resultado de la actividad beta total de hasta un 20 % y, por tanto, debe tenerse en cuenta su impacto en la actividad beta total si se desea emplear dicha actividad para evaluar la concentración atmosférica del plomo-210.

4.2.2 Muestras trimestrales

En el caso del proceso de muestras trimestrales principalmente se pueden proponer mejoras en la eficiencia de detección gamma y en la geometría de la muestra.

4.2.2.1 Estudio de la eficiencia de detección

Actualmente, el LARA aplica una eficiencia de detección determinada mediante una geometría que consiste en la colocación de 2 filtros en un recipiente de plástico de 5,3 cm de diámetro a los que se añaden 2 mL de solución patrón con referencia 136/49 y se diluye con 3 mL de HCl 1 N.

Las soluciones patrón utilizadas habitualmente contienen diversos radionucleidos, expuestos en la Tabla 8, para cubrir de forma adecuada todo el rango de interés energético (46 keV a 1,8 MeV) y determinar una curva de calibración con suficientes puntos de referencia.

Tabla 8. Radionucleidos contenidos en las soluciones patrón.

Isótopo	Energía (keV)
Pb-210	46
Am-241	59,54
Cd-109	88,03
Co-57	122,06
Ce-139	165,85
Hg-203	279,18
Sn-113	391,69
Sr-85	513,99
Cs-137	661,65
Y-88	898,02
Co-60	1.173,2
Co-60	1.332,5
Y-88	1.836,1

Dado que dicha geometría no se corresponde con la geometría exacta de las muestras a analizar (13 filtros en recipiente de plástico) se propone analizar si la eficiencia actualmente aplicada es susceptible de mejora.

La mejor aproximación para valorar esta mejora, sería preparar un patrón de calibración consistente en 13 filtros marcados con una solución certificada del mismo tipo que la empleada hasta ahora. Sin embargo, la mayoría de los isótopos empleados en las soluciones patrón tienen un periodo de semidesintegración muy corto, y por otro lado, el alto coste económico de dichas soluciones patrón ha supuesto que para este trabajo no se disponga de una solución conteniendo todos los isótopos de interés.

Así pues, se propuso valorar la validez de la curva de eficiencias que actualmente se utiliza aplicándosela a una muestra patrón que contiene americio-241, cesio-137 y cobalto-60, que a pesar de no contener todos los isótopos habituales, si cubre una buena parte del rango energético (60 keV a 1,3 MeV).

La muestra estaría formada por 13 filtros marcados con 0,2 mL de la disolución patrón con americio-241, cesio-137 y cobalto-60 introducidos también en un recipiente de plástico. Esta muestra de referencia tiene la misma geometría que las muestras trimestrales a analizar, requisito fundamental a tener en cuenta para poder comparar dos espectros, el de la calibración y el de la muestra.

4.2.2.2 Eficiencia gamma determinada

Los 13 filtros anteriores, que contienen una masa de disolución patrón de 2,7810 g en total, se miden y se calcula la actividad total utilizada para marcarlos.

Además, con los 13 patrones de plomo-210 preparados en las muestras semanales, explicado en el apartado 4.2.1.2, también se ha calculado la actividad gamma como si de una muestra trimestral se tratase.

En la Tabla 9 se indican tanto los resultados obtenidos del patrón con diversos radionucleidos como los del patrón de plomo-210 aplicando la curva de calibración habitual.

Tabla 9. Datos de la actividad del patrón y comparación.

	Energía (keV)	Actividad añadida (Bq)	Actividad calculada (Bq)	Diferencia (%)
Pb-210	46	11,26 ± 0,04	11,5 ± 1,9	2,1
Am-241	59,5	344,76	260,9 ± 11,8	- 24,3
Cs-137	661,6	318,67	262,3 ± 9,2	-17,7
Co-60	1.173	355,08	290,0 ± 8,3	-18,3
Co-60	1.332	354,99	290,6 ± 6,8	-18,1

Observando los resultados anteriores, se decide rehacer la curva de eficiencias manteniendo el punto de la eficiencia del plomo y disminuyendo un 20 % (promedio de las diferencias) los valores de eficiencia de la curva utilizada actualmente.

En la Tabla 10 se indican los valores disminuidos un 20%, exceptuando la eficiencia del plomo-210, de la nueva curva propuesta.

Tabla 10. Valores de la curva de calibración determinada.

Isótopo	Energía (keV)	Eficiencia gamma determinada (cps/gps)
Pb-210	46	0,22414
Am-241	59,54	0,17323
Cd-109	88,03	0,16779
Co-57	122,06	0,14898
Ce-139	165,85	0,10520
Hg-203	279,18	-
Sn-113	391,69	0,05664
Sr-85	513,99	0,03966
Cs-137	661,65	0,03355
Y-88	898,02	0,02165
Co-60	1173,2	0,01808
Co-60	1332,5	0,01611

Así pues, la curva de calibración propuesta quedaría ajustada a la ecuación 4 para energías inferiores a 122 keV y a la ecuación 5 para energías superiores a 122 keV.

$$\ln(Ef) = 4,287 - 2,505 \cdot \ln(E) + 0,2539 \cdot \ln(E)^2 \quad (4)$$

$$\ln(Ef) = 281,6 - 191,7 \cdot \ln(E) + 48,48 \cdot \ln(E)^2 - 5,43 \cdot \ln(E)^3 + 0,2261 \cdot \ln(E)^4 \quad (5)$$

donde,

Ef es la eficiencia de detección, en cps/gps;

E es la energía del isótopo, en keV.

Además, la nueva curva de calibración graficada se puede observar en la Figura 25.

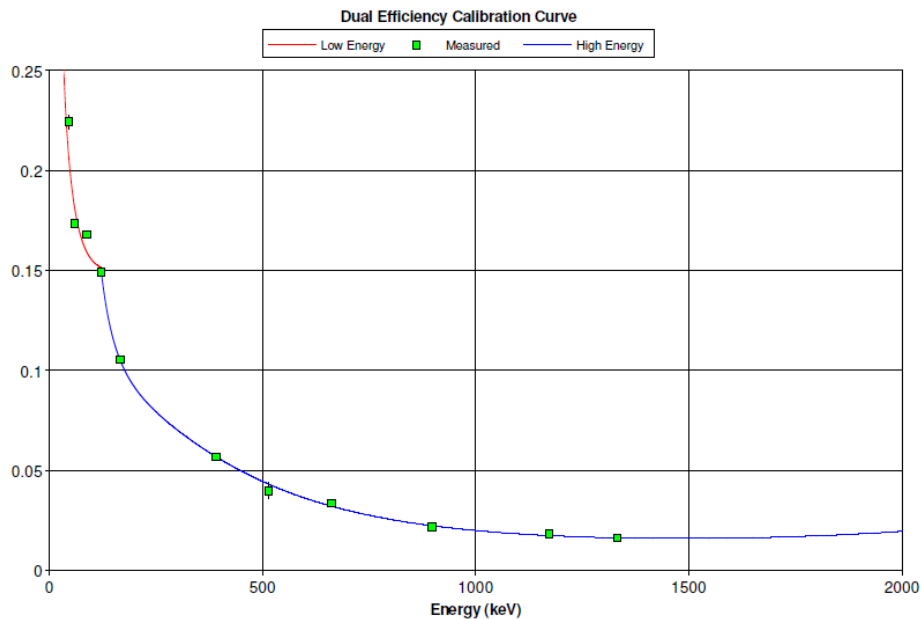


Figura 25. Curva de calibración propuesta.

La valoración de la curva de eficiencias utilizada hasta ahora pone en manifiesto que dicha curva subestima las actividades en un 20 %. Por lo tanto, se propone modificar la curva disminuyendo sus valores en dicho porcentaje.

4.2.2.3 Influencia del orden de colocación de los filtros

En la actualidad, el LARA utiliza el orden temporal del trimestre para la colocación de los filtros en el recipiente de plástico en el momento de realizar su medida mediante espectrometría gamma. Pero a causa de la gran dispersión existente en los valores de la radiactividad en los diferentes filtros (puede haber variaciones de más del 100 % entre semanas consecutivas), el orden de colocación puede llegar a influir en el resultado obtenido. Por este motivo, se propone estudiar la influencia del orden de colocación de los filtros en el recipiente.

Este factor de influencia será explicado en el siguiente apartado del capítulo.

4.3 Validación de la metodología propuesta e influencia del orden de colocación

Para finalmente dar por válida la metodología propuesta se ha procedido al análisis de filtros antiguos, comprendidos entre el período 2002 y 2007 y, estudiar la influencia del orden de colocación de los filtros en el recipiente.

La idea de volver a analizar los filtros de este período es porque actualmente, al haber transcurrido un tiempo superior a dos años desde el momento de su recogida, el plomo-210 se encuentra también en equilibrio secular con el polonio-210, así como el berilio-7 habrá desaparecido de todas las muestras debido a su corto periodo de semidesintegración. De este modo, se pueden seleccionar filtros de tal modo que sean muestras homogéneas. Se crean dos muestras ideales con un conjunto de 13 filtros en las cuales las actividades beta sean similares entre ellas y además, también se crea una muestra real de un trimestre completo.

Un primer conjunto de 13 filtros ideales reanalizados mediante el contador proporcional para después ser analizados mediante espectrometría gamma es el indicado en la Tabla 11. Este conjunto tiene una dispersión de actividad beta (plomo-210) del 35 % y su promedio es de 100 mBq/filtro. Realizando la suma de la actividad beta (plomo-210) en el conjunto se obtiene un valor de 1,30 Bq.

Tabla 11. Conjunto ideal de 13 filtros de actividad aproximada a 100 mBq/filtro.

Filtro	Peso residuo (mg)	Actividad beta (mBq/filtro)
F-433	17,3	118 ± 7
F-442	17,7	123 ± 7
F-248	19,4	105 ± 7
F-287	16,3	110 ± 7
F-357	15,2	98 ± 6
F-308	15,9	102 ± 6
F-378	15,9	93 ± 5
F-303	16,0	83 ± 6
F-302	20,2	88 ± 5
F-301	17,2	87 ± 6
F-376	16,2	114 ± 7
F-481	22,1	88 ± 6
F-479	19,7	89 ± 5

Otro conjunto de 13 filtros ideales reanalizados mediante el contador proporcional es el de la Tabla 12. Dicho conjunto tiene una dispersión del 30 % y un promedio de 187 mBq/filtro. Realizando la suma de la actividad beta (plomo-210) en el conjunto se obtiene un valor de 2,43 Bq.

Tabla 12. Conjunto de 13 filtros ideales de actividad beta aproximada a 187 mBq/filtro.

Filtro	Peso residuo (mg)	Actividad beta (mBq/filtro)
F-501	17,8	198 ± 10
F-409	20,6	201 ± 8
F-356	17,5	204 ± 8
F-399	24,4	185 ± 8
F-341	22,0	181 ± 7
F-513	20,2	208 ± 11
F-438	18,7	217 ± 11
F-295	22,7	168 ± 8
F-312	21,8	168 ± 8
F-440	22,7	189 ± 8
F-359	22,1	156 ± 8
F-377	19,6	192 ± 8
F-372	21,2	161 ± 9

Por último, el conjunto real de 13 filtros, los cuales forman el primer trimestre del año 2007, que comprende los meses de enero, febrero y marzo. En la Tabla 13, se muestra dicho conjunto donde se puede observar que la actividad beta (plomo-210) tiene una dispersión del 121 %, ya que el rango va de 61 a 208 mBq/filtro siendo su promedio 122 mBq/filtro. Realizando la suma de la actividad beta (plomo-210) experimental en el conjunto se obtiene un valor de 1,59 Bq.

Tabla 13. Conjunto real de 13 filtros que forman un trimestre.

Filtro	Peso residuo (mg)	Actividad beta (mBq/filtro)
F-495	10,6	107 ± 6
F-513	20,2	208 ± 11
F-511	14,3	114 ± 6
F-509	14,2	158 ± 7
F-494	29,7	186 ± 7
F-496	22,9	61 ± 5
F-479	19,7	89 ± 5
F-482	34,6	84 ± 5
F-481	22,1	88 ± 6
F-480	42,2	144 ± 8
F-515	42,9	95 ± 5
F-489	37,4	91 ± 6
F-503	12,6	165 ± 9

En la Tabla 14 se muestran las diferentes actividades de plomo-210 obtenidas de los tres conjuntos, mediante el detector de Germanio-4, comparándolas con la actividad beta previamente analizada.

Tal y como se puede observar, para los conjuntos ideales el error máximo encontrado es de un 14 %, dentro de las incertidumbres asociadas. Pero para el conjunto real, existe un error sistemático en el cual el valor de actividad gamma aumenta cuando los filtros de actividad mayor se encuentran más cerca del detector, lo que hace que el error disminuya. Por este motivo, en el conjunto real el error va del 17 al 32 %.

Además, se ha querido analizar una repetición de una medida con el mismo orden pero en un día diferente y se puede observar cómo se mantiene prácticamente constante el valor obtenido, de tal modo que la incertidumbre debida al posicionado del recipiente en el detector de germanio es pequeña.

Tabla 14. Actividades betas comparadas con actividades gammas.

	Orden	Tiempo (s)	Actividad gamma (Bq)	Actividad beta (Bq)	Diferencia (%)
1r conjunto ideal	A teórica de mayor a menor	247.440	$1,1 \pm 0,2$	$1,30 \pm 0,02$	14,1
2n conjunto ideal	A teórica de mayor a menor	67.420	$2,2 \pm 0,4$	$2,43 \pm 0,03$	10,0
	Homogéneo	135.950	$2,1 \pm 0,4$	$2,43 \pm 0,03$	12,8
	Homogéneo	206.430	$2,1 \pm 0,4$	$2,43 \pm 0,03$	13,7
Conjunto real	Temporal	245.780	$1,1 \pm 0,3$	$1,59 \pm 0,02$	29,6
	A de menor a mayor	261.940	$1,3 \pm 0,3$	$1,59 \pm 0,02$	16,6
	A de mayor a menor	336.660	$1,1 \pm 0,2$	$1,59 \pm 0,02$	31,5
	A de mayor a menor	243.280	$1,1 \pm 0,3$	$1,59 \pm 0,02$	31,7

De esta manera, para un conjunto ideal al ser el error máximo de un 14 % se daría por validada la metodología propuesta. En cambio, en el momento de analizar un conjunto real se deberían ordenar los filtros con una actividad de menor a mayor para obtener una correcta medida, ya que sino el valor obtenido puede diferir en un 30 % o más.

5 Estudio económico

El presente presupuesto hace referencia al coste atribuible en el desarrollo del proyecto. Para la realización de este, se ha utilizado material consumible e inmovilizado. Además, hará falta contabilizar también el tiempo del personal implicado. Se ha requerido uso del personal del INTE para el uso y gestión de los detectores de medida y para la preparación de patrones.

Así pues, los costes económicos derivados de la realización del trabajo quedan divididos en los siguientes conceptos: horas de personal, amortización del inmovilizado, coste del material fungible y consumo eléctrico de la bomba de bajo caudal. A estos costes directos se ha de añadir un coste indirecto que se estimará como un 5 % de los costes directos.

Las horas de personal comprenden los siguientes conceptos:

- Estudio del proceso de determinación de la concentración de aerosoles radiactivos llevado a cabo en el INTE para muestras semanales y trimestrales.
- Preparación de patrones.
- Validación de la metodología propuesta.

Las horas del personal del INTE comprenden los siguientes conceptos:

- Preparación de patrones
- Gestión y utilización de los detectores.
- Supervisión general y revisión de la memoria.

El coste del personal cualificado del INTE es de 30 €/hora, mientras que el coste considerado para el estudiante es de 12 €/hora.

Los costes del material consumible que se han empleado se ha calculado según los precios proporcionados por el laboratorio y los costes de amortización del inmovilizado han tenido en cuenta la vida útil de los equipos que el laboratorio considera y la capacidad anual media que pueden soportar.

5.1 Costes directos

5.1.1 Tiempo de dedicación del personal

Se han realizado un total de 400 horas en el laboratorio del INTE: tres meses con la dedicación de 25 horas/semana, con 4 semanas/mes y un mes con la dedicación de 30 horas/semana, con 4 semanas/mes. Adicionalmente, se han dedicado 215 horas más con la finalidad de completar la redacción de la memoria.

Por parte del personal del INTE se han empleado 80 horas. En la Tabla 15 se presenta un resumen del coste asociado al tiempo empleado.

Tabla 15. Coste asociado al tiempo personal empleado.

Operario	Tiempo (horas)	Precio (€/hora)	Cantidad (€)
Estudiante	635	12	7.620
Personal INTE	80	30	2.400
		TOTAL	10.020

5.1.2 Material consumible

El coste del material consumible durante la realización del trabajo es el mostrado en la Tabla 16.

Tabla 16. Coste asociado al material consumible.

Descripción	Cantidad	Precio unitario (€/unidad)	Total (€)
Bombona gas detector proporcional	149	0,96	143,04
Nitrógeno refrigeración detectores gamma	13	13,5	175,5
Patrón plomo	1	700	700
Patrón cóctel	1	1.000	1.000
Filtro bomba bajo caudal	27	0,2	5,4
Punta pipeta 1 mL	28	0,02	0,56
		TOTAL	2.024,5

5.1.3 Amortizaciones de los equipos

El inmovilizado tiene una vida útil, y mediante los usos se va desgastando. Por lo tanto, hay que calcular el coste de amortización que esto conlleva. En la Tabla 17 se indica el coste asociado a las amortizaciones de los equipos empleados durante la realización del trabajo.

Tabla 17. Coste asociado a las amortizaciones de los equipos.

Descripción	Capacidad anual	Amortización anual (€)	Amortización por uso (€/uso)	Usos	Total (€)
Detector proporcional	220	3.000	13,64	68	927,27
Detector gamma	240	9.000	37,5	13	487,50
Balanza	3.300	750	0,23	62	14,09
Lámpara	880	27	0,03	6	0,18
				TOTAL	1.429,0

5.1.4 Costes indirectos

Los costes indirectos se calculan considerando un porcentaje estimado del 5 % de los costes directos, y son los presentados en la Tabla 18.

Tabla 18. Resumen costes indirectos.

Concepto	Importe (€)
Tiempo de dedicación	10.020
Material consumible	2.024,5
Inmovilizado	1.429,04
Total costes directos	13.473,54
5 % costes indirectos	673,68

5.2 Coste total

El coste total del proyecto se calcula considerando la suma de todos los costes anteriores mencionados, y es el presentado en la Tabla 19.

Tabla 19. Coste total del proyecto.

Concepto	Importe (€)
Tiempo de dedicación	10.020
Material consumible	2.024,5
Inmovilizado	1.429,04
5 % costes indirectos	673,68
Subtotal	14.147,22
IVA 21 %	2.970,92
TOTAL	17.118,14

6 Estudio del impacto ambiental

6.1 Consideraciones

Teniendo en cuenta el contexto del trabajo, el potencial de impacto ambiental se considera leve debido a sus características intrínsecas:

- La actividad desarrollada no ha utilizado procesos de transformación de materias primas.
- El consumo de agua durante su realización es considerada despreciable.
- Los filtros usados para el estudio serán almacenados por el INTE como los patrones o material de referencia.

6.2 Residuos sólidos

Siguiendo el protocolo en el laboratorio, los filtros resultantes de recolección de aerosoles serán almacenados por parte del INTE. El resto de residuos generados son almacenados hasta la recogida por parte de EcoCat, la empresa de gestión de residuos químicos con la cual trabaja el laboratorio.

6.3 Emisiones de gases

Como la bomba de bajo caudal tiene un consumo eléctrico, habrá una emisión no despreciable de CO₂ asociada al muestreo. El factor que recomiendo utilizar, a marzo de 2015, la Oficina Catalana del Cambio Climático [17] para contabilizar dichas emisiones es de 267 g CO₂/kWh.

$$\frac{0,267 \text{ kg } CO_2}{kWh} \cdot 231 \text{ kWh} = 61,68 \text{ kg } CO_2$$

6.4 Emisión de sonido/ruido

La bomba de bajo caudal empleada genera contaminación sonora, pero debido a su ubicación en el terrado de las instalaciones, un edificio próximo a una avenida muy transitada, se considera que el impacto generado es muy leve.

6.5 Residuos especiales

En la realización de este proyecto se ha trabajado con muestras ambientales, lo que significa que aunque los filtros contienen una radiactividad, esta es muy baja debido a su origen y no se consideran residuos radiactivos.

Además de las muestras ambientales, también se ha trabajado con patrones. El material empleado en la realización de los patrones es almacenado por parte del INTE hasta su

evacuación convencional o recogida por parte de ENRESA, la empresa nacional de gestión de residuos radiactivos.

7 Planificación temporal del trabajo

Este trabajo tiene una duración de 4 meses, es decir, 16 semanas que se han repartido según las tareas indicadas en el diagrama de Gantt mostrado en la Figura 25. La semana 1 en este trabajo hace referencia a la semana 37 del año 2015.

SEMANAS	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15	16
Tarea 1																
Tarea 2																
Tarea 3																
Tarea 4																
Tarea 5																
Tarea 6																
Tarea 7																
Tarea 8																

Figura 26. Diagrama de Gantt del trabajo.

- **Tarea 1.** Búsqueda, lectura y síntesis de información y artículos relacionados con el trabajo.
- **Tarea 2.** Estudio del proceso de la determinación de la concentración de aerosoles radiactivos llevado a cabo en el INTE.
- **Tarea 3.** Análisis de filtros del período comprendido entre los años 2002 y 2007 mediante el equipo proporcional y el de espectrometría gamma.
- **Tarea 4.** Análisis de la eficiencia de detección del equipo proporcional.
- **Tarea 5.** Análisis de la curva de calibración del equipo de espectrometría gamma.
- **Tarea 6.** Puesta en marcha del muestreador de bajo caudal para el estudio del tiempo de espera entre captación y medida.
- **Tarea 7.** Estudio de la evolución temporal de un filtro mediante el equipo proporcional.
- **Tarea 8.** Redacción de la memoria del trabajo.

Conclusiones

El estudio realizado ha permitido disponer de un mejor conocimiento de las características del proceso de determinación de la concentración de aerosoles radiactivos. A partir de dicho estudio, se han encontrado los diferentes puntos susceptibles a ser mejorados.

En el caso de las muestras semanales, se han propuesto mejoras en la eficiencia de detección y el cálculo de la actividad beta con el uso de un factor de spillover adecuado a las muestras a analizar en rutina. Para ello se han elaborado nuevos patrones de calibración y analizado la bibliografía disponible.

Con respecto a las muestras trimestrales, se ha valorado el impacto de la diferencia de la geometría de la muestra y el patrón de calibración utilizado habitualmente, así como se ha evaluado la influencia del orden de colocación de los filtros en el recipiente en condiciones reales. Para ello se han elaborado nuevos patrones de calibración y se ha propuesto una nueva curva de eficiencia.

Finalmente, la nueva metodología propuesta se ha validado con diferencias entre resultados gamma y beta total del 14 %.

Agradecimientos

Me gustaría finalizar el trabajo presente agradeciendo a la Cátedra ARGOS del Consejo de Seguridad Nuclear (CSN) su ayuda financiera para la realización del proyecto.

También me gustaría agradecer a las personas que me han ayudado a elaborar los análisis y desarrollar el trabajo, la directora del proyecto, Maria Amor Duch, y a Antonia Camacho, por la orientación, la ayuda y la implicación en el desarrollo de este proyecto.

Además, también quisiera agradecer al personal del laboratorio el permitirme utilizar su espacio de trabajo y las consultas sobre procedimientos y material.

Finalmente, y no por ello menos importante, me gustaría agradecer a mi familia y amigos el apoyo recibido durante este periodo.

Bibliografía

Referencias bibliográficas

- [1] United Nations Scientific Committee on the effects of Atomic Radiation (UNSCEAR), **Sources and Effects of Ionizing Radiation: Report to the General Assembly**, Report Vol 1, 2008.
- [2] Consejo de Seguridad Nuclear. [Consulta: 17/09/2015]. Disponible en: www.csn.es
- [3] CSN. Colección Informes Técnicos del CSN. **Programas de vigilancia radiológica ambiental**. Resultados 2013.
- [4] Diccionario de la Real Academia Española. [Consulta: 21/09/2015]. Disponible en: <http://dle.rae.es/>
- [5] William C. Hinds, **Aerosol Technology: Properties, Behavior and Measurement of Airborne Particles**, 2nd Edition, 1999.
- [6] Stephen D. Schery, **Understanding Radioactive Aerosols and their Measurement**, Kluwer Academic Publishers, 2001.
- [7] C. Papastefanou, **Radioactive Aerosols**, vol. 12, Elsevier, pp. 3-11.
- [8] J. V. Iribarne, H. R. Cho, **Atmospheric Physics**, D. Reidel Publishing Company, pp. 40-42, 1945.
- [9] Xavier Ortega, Jaume Jorda, **Radiaciones ionizantes: utilización y riesgos I**, Edicions UPC, 1994.
- [10] Xavier Ortega, Jaume Jorda, **Radiaciones ionizantes: utilización y riesgos II**, Edicions UPC, 1996.
- [11] Michael F., **Handbook of Radioactivity Analysis**, 3th Edition, 2012.
- [12] Empresa F&J Specialty Products, INC. [Consulta: 07/10/2015]. Disponible en: <http://www.fjspecialty.com/pdf/LV1E.pdf>
- [13] Ll. Pujol, J.A. Suárez-Navarro, M.F. Díaz, **Estudio comparativo de los modos de medida secuencial y simultánea con el contador proporcional LB- 770-2**. En: XXV Reunión Anual de la Sociedad Nuclear Española, Granada, 1999.
- [14] **Germanium Detectors, User's Manual**, Canberra Industries, 2003.
- [15] CSN. Colección Informes Técnicos del CSN. **Selección, preparación y uso de patrones para espectrometría gamma**. CSN 2004.
- [16] I. Vallés, A. Camacho, X. Ortega, I. Serrano, S. Blázquez, S. Pérez, **Natural and anthropogenic radionuclides in airborne particulate samples collected in Barcelona (Spain)**, Journal of Environmental Radioactivity 100, pp. 102-107, 2009.
- [17] OFICINA CATALANA DEL CANVI CLIMÀTIC, **Guia pràctica per al càlcul d'emissions de gasos amb efecte d'hivernacle (GEH)**, marzo del 2015.

Bibliografía complementaria

M. Garcia-Talavera, B. Quintana, E. García-Díez, F. Fernández, **Studies on radioactivity in aerosols as a function of meteorological variables in Salamanca (Spain)**, Atmospheric Environment 35, pp. 221-229, 2001.

C. Dueñas, M.C. Fernández, J. Carretero, E. Liger, S. Cañete, **Long-term variation of the concentrations of long-lived Rn descendants and cosmogenic ^7Be and determination of the MRT of aerosols**, Atmospheric Environment 38, pp. 1291–1301, 2004.

Yan-Jun Huang, Yun-Liang Tao, Jun Lin, Zhi-Hong Shang-Guan, **Annual cycle of gross α activities in aerosol around Daya Bay area, China**, Chemosphere 75, pp. 929–933, 2009.

Magdalena Długosz, Paweł Grabowski, Henryk Bem, **^{210}Pb and ^{210}Po radionuclides in the urban air of Lodz, Poland**, J Radioanal Nucl Chem 283, pp. 719–725, 2010.

R. L. Lozano, E. G. San Miguel, J. P. Bolívar, **Assessment of the influence of in situ ^{210}Bi in the calculation of in situ ^{210}Po in air aerosols: Implications on residence time calculations using $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ activity ratios**, Journal of Geophysical Research, Vol. 116, D08206, 2011.

S. Kaminski, A. Jakobi, Chr. Wilhelm, **Uncertainty of gamma-ray spectrometry measurement of environmental samples due to uncertainties in matrix composition, density and sample geometry**, Applied Radiation and Isotopes 94, pp. 306–313, 2014.

C. Papastefanou, E. A. Bondiotti, **Mean residence times of atmospheric aerosols in the boundary layer as determined from $^{210}\text{Bi}/^{210}\text{Pb}$ activity ratios**, J. Aerosol Sci., Vol. 22, N° 7, pp. 927-931, 1991.

C. Dueñas, M. C. Fernández, E. Liger, J. Carretero, **Gross alpha, gross beta activities and ^7Be concentrations in surface air: analysis of their variations and prediction model**, Atmospheric Environment 33, pp. 3705-3715, 1999.

C. Dueñas, M.C. Fernández, J. Carretero, E. Liger, S. Cañete, **Gross- α and gross- β activities in airborne particulate samples. Analysis and prediction models**, Applied Radiation and Isotopes 54, pp. 645-654, 2001.

F. Hernández, J. Hernández-Armas, A. Catalán, J.C. Fernández-Aldecoa, L. Karlsson, **Gross alpha, gross beta activities and gamma emitting radionuclides composition of airborne particulate samples in an oceanic island**, Atmospheric Environment 39, pp. 4057–4066, 2005.

C. Monsanglant-Louvet, M. Osmond, L. Ferreux, N. Liatimi, A. Maulard, J. L. Picolo, B. Marcillaud, F. Gensdarmes, **Production of reference sources of radioactive aerosols in filters for proficiency testing**, Applied Radiation and Isotopes 95, pp. 13-22, 2015.